



# Développement d'un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides

Jean-Christophe Benoit

## ► To cite this version:

Jean-Christophe Benoit. Développement d'un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112254 . tel-01064275

**HAL Id: tel-01064275**

**<https://theses.hal.science/tel-01064275>**

Submitted on 16 Sep 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE : 534 MIPEGE

Laboratoire d'Etude du Cycle (Commissariat à l'Energie Atomique)

*DISCIPLINE Physique*

THÈSE DE DOCTORAT

Date de soutenance prévue le 24/10/2012

par

Jean-Christophe BENOIT

# Développement d'un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides

## Composition du jury :

*Rapporteurs :*

José BUSTO

Physicien (CPPM Marseille)

*Examineurs :*

Jan WAGEMANS

Chef d'unité (SCK-CEN Mol)

Pierre DESESQUELLES

Physicien (CSNSM Orsay)

Cheikh DIOP

Chef de projet (CEA Saclay)

Grégoire KESSEDJIAN

Physicien (LPSC Grenoble)

Olivier SEROT

Directeur de thèse (CEA Cadarache)

*Membres invités :*

Romain ESCHBACH

Encadrant, Chef de laboratoire (CEA Cadarache)





# REMERCIEMENTS

Je remercie monsieur Pierre DESESQUELLES d'avoir accepté de présider mon jury de thèse, messieurs Jan WAGEMANS et José BUSTO pour leur relecture de mon manuscrit et pour leurs remarques, ainsi que messieurs Grégoire KESSEDJIAN et Chiekh DIOP pour avoir accepté de faire partie de mon jury et pour les discussions que nous avons eu sur la méthodologie de calcul de la puissance résiduelle, sur les covariances des rendements de fission et sur les méthodes de propagation des incertitudes.

Je remercie très chaleureusement mon directeur de thèse Olivier SEROT et mes encadrants Lionel BOUCHER et Romain ESCHBACH. Leur disponibilité, leur écoute attentive, leurs critiques constructives et leurs idées d'amélioration m'ont été d'une grande aide pour mener à bien ce projet.

Je tiens également à remercier tout particulièrement Patrick BOURDOT et Jean TOMMASI. Le premier pour avoir accepté d'encadrer mon stage de M2 et m'avoir permis de démarrer sereinement ma thèse. Le code CyRUS lui doit beaucoup pour son aide dans mon apprentissage de certains langages informatiques. Le second pour les discussions constructives que nous avons eu sur les expériences de bilan matière, pour son aide sur le code ERANOS, sur la propagation des incertitudes, sur le calcul adjoint, et en général pour avoir accepté de revoir certains développements mathématiques.

Je remercie Vincent PASCAL pour son aide sur les calculs neutroniques afin de simuler l'environnement neutronique du cœur du réacteur PHENIX.

J'ai été ravi de travailler au Service de Physique des Réacteurs et du Cycle. Les personnes que j'y ai rencontrées ont toujours été très compétentes et particulièrement amicales.

Merci aux responsables et secrétaires de l'école doctorale MIPEGE d'avoir facilité les démarches administratives parfois dans des laps de temps très restreints.

Je remercie ma chérie Stéphanie pour ses encouragements durant toute la période de la thèse et en particulier durant celle de la rédaction. Un grand merci également à ma famille pour leur soutien sans faille.

Enfin, un environnement social agréable est toujours un plus pour le travail. C'est avec un plaisir toujours renouvelé que j'ai participé aux différentes manifestations de l'association des thésards de Cadarache (ASTHEC) que ce soit culturel (petits déj de laboratoire, visites hors centre) ou un peu moins (Restaurants, Intégration, Randonnée nocturne). Un grand merci à tous les amis de passage (plus ou moins long) sur Aix : Nicolas, JJ, Olga, Raquel, Fabio, Emil, Charlotte, Pascal, Damien, Nicolas, Li, Simon, Ansar, David, Benjamin, Clémence, Delphine, Vincent, Lou Saï et Pierre. Vive les échecs au Bulldogge et le tennis sur les courts du château et de la cité.

# PLAN DE LA THESE

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>13</b>
--------------------------	-----------

## **PARTIE I**

<b>LA PUISSANCE RESIDUELLE : DEFINITION, EVALUATION, EXPERIENCES DE VALIDATION DANS LES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES .....</b>	<b>21</b>
--	-----------

I – Rappels sur la puissance résiduelle.....	22
A – Découverte, explication et modélisation du phénomène de puissance résiduelle .....	22
B – Définition générale actuelle .....	23
C – Aspects de physique fondamentale .....	24
D – Modélisation de la puissance résiduelle.....	26
1) Lois statistiques.....	26
2) Courbes de fission élémentaire .....	28
3) Calcul de la concentration des noyaux.....	32
E – Expériences de puissance résiduelle.....	37
F – Ordre de grandeur de la puissance résiduelle et de son incertitude .....	40
II – Le formulaire dédié aux calculs d'évolution au CEA : DARWIN.....	48
A – Schéma de fonctionnement du formulaire DARWIN .....	48
B – Schéma de fonctionnement du formulaire ERANOS.....	49
C – Méthodologie de validation des codes de calcul .....	51
III – Description du fonctionnement d'un réacteur à neutrons rapides : la centrale PHENIX .....	52
A – Avantages et inconvénients des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium .....	52
B – Description de la centrale PHENIX .....	54
1) Description générale de la centrale .....	54
2) Description du cœur du réacteur PHENIX.....	55
IV – Les expériences de validation expérimentale du formulaire DARWIN .....	59
A – L'expérience de bilan matière TRAPU .....	59
B – Les expériences de puissance résiduelle .....	62
1) Historique des essais de puissance résiduelle sur les RNR français.....	62
2) Procédure d'analyse des essais de puissance résiduelle PUIREX.....	64
3) Différence entre l'essai de 2008 et les essais précédents .....	65
4) Résultats expérimentaux de l'essai PUIREX 2008 .....	69

## **PARTIE II**

### **DESCRIPTION DE L'ESSAI PUIREX 2008 ET IDENTIFICATION DES DONNEES NUCLEAIRES IMPACTANT LA PUISSANCE RESIDUELLE**

..... **73**

#### **Chapitre 1 – Identification et caractérisation des composants du cœur du réacteur PHENIX produisant la chaleur résiduelle dans l'essai PUIREX ..... 74**

##### **I – Modélisation de l'essai PUIREX de 2008 ..... 74**

###### **A – Création des jeux de données pour le calcul d'évolution ..... 75**

###### **1) Description des composants analysés ..... 75**

###### **2) Création des historiques d'irradiation ..... 76**

###### **3) Modélisation du cœur du réacteur PHENIX ..... 78**

###### **B – Création d'une image du cœur pour la modélisation neutronique de l'essai PUIREX ..... 79**

###### **1) Création de l'image du cœur ..... 79**

###### **2) Description des assemblages pour le calcul cellule ECCO ..... 80**

###### **3) Calcul cœur de neutronique avec VARIANT ..... 81**

##### **II – Calcul des puissances résiduelles des composants ..... 81**

###### **A – Caractéristiques neutroniques du cœur du réacteur ..... 82**

###### **B – Résultats sur la puissance résiduelle après le calcul d'évolution ..... 83**

###### **1) Résultat de la puissance résiduelle totale et comparaison calcul/expérience ..... 83**

###### **2) Sélection des contributeurs majoritaires à la puissance résiduelle ..... 85**

#### **Chapitre 2 – Identification et analyse des données nucléaires impactant la puissance résiduelle dans les assemblages fissiles et fertiles ..... 89**

##### **I – Sélection des noyaux nécessaires à la modélisation de la puissance résiduelle ..... 89**

###### **A – Identification des noyaux responsables de la puissance résiduelle ..... 90**

###### **1) Définition d'un critère de sélection des noyaux ..... 90**

###### **2) Identification des noyaux responsables de la puissance résiduelle ..... 92**

###### **B – Création des chaînes de réactions pour les produits de fission ..... 93**

###### **1) Sélection des noyaux lourds nécessaires à la modélisation des produits de fission sélectionnés ..... 93**

###### **2) Création des chaînes de produits de fission ..... 99**

###### **C – Création des chaînes de réactions pour les noyaux lourds ..... 106**

##### **II – Etude des réactions nécessaires à la modélisation fine de la puissance résiduelle.. 107**

###### **A – Etude de l'effet de capture sur la puissance résiduelle dégagée par un échantillon pur de <sup>239</sup>Pu irradié ..... 109**

###### **1) Evolution de l'impact de cet effet sur la puissance résiduelle en fonction du temps de refroidissement ..... 109**



2) Caractérisation de la différence de puissance résiduelle lors de la prise en compte de l'effet de capture des produits de fission .....	110
B – Etude de l'influence des paramètres d'irradiation.....	115
C – Evaluation de l'effet de capture sur les assemblages PHENIX de l'essai PUIREX.....	117

## **PARTIE III**

### **DEVELOPPEMENT ET VALIDATION D'UN CODE DE PROPAGATION DES INCERTITUDES : CYRUS ..... 121**

#### **Chapitre 1 – Sélection d'une méthode de propagation des incertitudes adaptée à la problématique de la puissance résiduelle..... 123**

I – Analyse des codes existants de calcul de la puissance résiduelle et de propagation des incertitudes .....	123
A – Analyse des codes de propagation déterministes .....	124
1) Disponibilité des codes .....	124
2) Domaine de validité des codes.....	125
3) Méthode de propagation des incertitudes.....	125
B – Analyse des codes de propagation stochastiques .....	126
1) Analyse de la disponibilité des codes.....	126
2) Domaine de validité des codes.....	126
II – Choix de la méthode déterministe ou probabiliste de propagation des incertitudes	127

#### **Chapitre 2 – Développement d'un code déterministe de propagation des incertitudes des données nucléaires sur le bilan matière et la puissance résiduelle : CYRUS (Cycle Reactor Uncertainty and Sensitivity)..... 129**

I – Formulation du problème de la propagation des données nucléaires .....	130
A – Propagation des incertitudes sur le bilan matière.....	131
B – Propagation des incertitudes sur la puissance résiduelle.....	131
C – Utilisation de la variance dans la définition des incertitudes .....	133
II – Méthode de calcul des matrices de sensibilité.....	134
A – Méthode de calcul de la matrice de sensibilité du bilan matière .....	134
1) Développement d'un solveur pour la résolution des équations de Bateman .....	135
2) Comparaison des méthodes de calcul des coefficients de sensibilité .....	140
B – Méthode de calcul de la matrice de sensibilité de la puissance résiduelle .....	148
III – Description et obtention des matrices de covariance .....	149
A – Incertitude des rendements de fission .....	149

B – Incertitude des périodes de décroissance.....	151
C – Incertitude sur les énergies de décroissance.....	153
D – Incertitude sur les rapports de branchement.....	154
E – Incertitude sur les sections efficaces .....	155
<b>Chapitre 3 – Validation théorique de la méthode déterministe et comparaison par rapport à la méthode probabiliste sur l'exemple de la courbe de fission élémentaire de <math>^{235}\text{U}</math> dans un spectre thermique.....</b>	<b>158</b>
<b>I – Justification de l'approximation de linéarité.....</b>	<b>159</b>
A – Calcul de l'importance du terme du second ordre dans la variance du bilan matière pendant l'irradiation .....	161
1) Sensibilité des produits de fission aux paramètres .....	161
B – Calcul de l'importance du terme du second ordre dans la variance du bilan matière pendant le refroidissement .....	170
1) Etude des temps caractéristiques d'impact des noyaux sur la puissance résiduelle.....	170
2) Etude de l'impact de la sensibilité du deuxième ordre de la concentration d'un isotope à sa période .....	172
C – Calcul de l'importance du terme du second ordre dans la puissance résiduelle.....	177
<b>II – Justification de l'hypothèse de normalité des concentrations et de la puissance résiduelle .....</b>	<b>178</b>
A – Justification de la loi de distribution normale pour les paramètres d'entrée .....	179
B – Justification de la loi de distribution normale pour les concentrations.....	180
1) Problème de la multiplication pour l'estimation de la loi de dispersion des concentrations .....	181
2) Problème de l'estimation de la loi de dispersion des concentrations dans le cas de l'exponentielle d'une variable gaussienne .....	184
3) Problème de l'estimation de la loi de dispersion des concentrations dans le cas du rapport de l'exponentielle d'une variable gaussienne sur la même variable gaussienne .....	189
4) Etude de la forme de la loi de dispersion de la concentration .....	189
C – Justification de la loi de distribution normale pour la puissance résiduelle .....	194
<b>III – Comparaison numérique de CYRUS par rapport à un calcul stochastique sur l'exemple de la fission élémentaire de <math>^{235}\text{U}</math> en spectre thermique .....</b>	<b>195</b>
A – Mise en place des calculs .....	195
1) Données utilisées dans URANIE/MENDEL.....	195
2) Données utilisées dans CYRUS .....	197
B – Comparaison des résultats du calcul de la puissance résiduelle.....	197
C – Comparaison des résultats du calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle.....	199
D – Analyse des écarts entre CYRUS et URANIE/MENDEL .....	200
1) Analyse d'une hypothèse simplificatrice de CYRUS.....	200
2) Analyse de l'échantillonnage des paramètres avec URANIE/MENDEL .....	201

## **PARTIE IV**

### **APPLICATIONS DU CODE CYRUS ..... 203**

I – Evaluation de l’incertitude de la puissance résiduelle dans l’essai PUIREX .....	204
A – Mise en place des jeux de données .....	204
B – Analyse des résultats des calculs d’incertitudes .....	205
1) Incertitude sur la puissance résiduelle des assemblages du cœur .....	205
2) Incertitude sur la puissance résiduelle des assemblages placés en stockage interne .....	208
3) Incertitude de la puissance résiduelle du réacteur .....	209
C – Conclusion sur l’interprétation de l’essai PUIREX.....	213
II – Evaluation de l’incertitude du bilan matière dans l’essai TRAPU .....	214
A – Modélisation des jeux de données pour le calcul numérique .....	215
1) Historique d’irradiation.....	215
2) Modélisation des chaînes d’évolution pour l’expérience TRAPU .....	218
3) Source des données d’incertitude.....	218
B – Résultats de l’expérience TRAPU.....	219
1) Description des données mesurées.....	219
2) Analyse des résultats de l’expérience.....	219
C – Conclusion sur l’interprétation de l’essai TRAPU .....	225
III – Analyse de la puissance résiduelle produite par une fission thermique de l’ <sup>235</sup> U..	226
A – Description des données du calcul .....	227
B – Comparaison des résultats du calcul de puissance résiduelle avec les mesures .....	227
C – Analyse de l’incertitude de calcul de la puissance résiduelle.....	229
D – Conclusion sur l’interprétation de la courbe de fission élémentaire thermique de l’ <sup>235</sup> U .....	234

### **CONCLUSION ..... 235**

### **DISCUSSION & PERSPECTIVES..... 239**

I – Intérêt du code CYRUS .....	239
II – Utilisation des rendements de fission cumulés.....	241
III – Etude de l’impact des sections efficaces de capture sur l’incertitude de la puissance résiduelle .....	242
IV – Retour sur le biais du <sup>144</sup> Nd dans l’expérience TRAPU .....	244
V – Retour sur les codes de propagation des incertitudes stochastique .....	246
A – Aide à la validation de l’hypothèse des lois de distribution normales dans le code CYRUS .....	246
B – Retour sur les lois de distribution des données nucléaires d’écart-type important.....	248

<b>REFERENCES .....</b>	<b>251</b>
-------------------------	------------

<b>ANNEXES .....</b>	<b>263</b>
----------------------	------------

ANNEXE 1 : Développement du calcul de la variance du résultat en supposant un développement en série de Taylor jusqu'à l'ordre 2 .....	264
ANNEXE 2 : Obtention des formules de sensibilité pour un calcul adjoint.....	267
ANNEXE 3 : Comparaison du calcul des concentrations entre CYRUS et DARWIN .	271
ANNEXE 4 : Liste des courbes de fission élémentaire .....	275



# INTRODUCTION

Le thème étudié dans cette thèse est la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Ce phénomène est défini comme étant la chaleur à évacuer du réacteur après l'arrêt d'une centrale nucléaire. Il est primordial de pouvoir prévoir précisément sa valeur quelles que soient les conditions d'irradiation et les compositions initiales en noyaux fissionnant et cela pour n'importe quel temps de refroidissement.

Trois éléments de contexte actuel viennent illustrer l'intérêt de cette étude.

Premièrement, la filière des réacteurs à neutrons rapides est susceptible de répondre favorablement aux critères majeurs du forum international Génération IV : la sûreté et le développement durable. Ces points forts basés sur un cycle du combustible fermé grâce à des réacteurs iso-générateurs et la possibilité de réduire la masse de déchets nucléaires de haute activité à vie longue en les transmutant en font un concept retenu pour des études approfondies. Ces raisons ainsi que l'accumulation d'expérience, lui font bénéficier, en particulier en France, d'un fort regain d'intérêt. C'est pourquoi la France a décidé de s'investir dans le projet ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration), un réacteur prototype d'une puissance estimée de 600 MWe dont la construction pourrait être décidée en 2017. Les laboratoires de recherche et développement du CEA doivent réaliser la conception de ce nouveau réacteur avec comme problématique majeure la sûreté dont la puissance résiduelle fait partie intégrante.

Deuxièmement, l'accident de Fukushima est entièrement dû à la défaillance des systèmes de secours permettant l'évacuation de la puissance résiduelle. Le séisme a provoqué l'arrêt automatique de la centrale ainsi qu'un tsunami extrêmement puissant. Ce tsunami, par son effet destructeur, a fait des dizaines de milliers de morts et de disparus et des centaines de milliers de déplacés, mais a également isolé électriquement la centrale. L'électricité de la centrale ne dépendait alors que des batteries et des diesels de secours pour lui fournir son électricité. Or, une évaluation sous-estimée des plus hautes vagues pouvant atteindre le rivage de la centrale, et un choix de conception de la centrale qui s'est révélé mauvais, ont abouti à une inondation et une perte de ses moteurs diesels. Sans électricité pour faire fonctionner les

## INTRODUCTION

systèmes de refroidissement du réacteur, la température de l'eau a fortement augmentée dans les réacteurs ce qui a provoqué l'électrolyse de l'eau en dihydrogène (générant des explosions dans les bâtiments réacteurs), son évaporation, un dénoyage des assemblages combustibles suivi d'une oxydation et une rupture des gaines des crayons combustibles (température limite de rupture de gaine :  $1200^{\circ}\text{C}$ ). Le combustible n'étant plus correctement refroidi, il a chauffé et dépassant la température du point de fusion ( $2300^{\circ}\text{C}$ ) a finalement fondu pour former un mélange extrêmement chaud composé du combustible, des structures et des gaines : le corium. Celui-ci s'est accumulé dans la cuve et a pu, éventuellement, la percer par corrosion ou par fusion et générer d'importants rejets radioactifs.

Troisièmement, les directives de l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) étant toujours plus strictes, les industriels doivent revoir leur méthodologie de propagation des incertitudes sur les données du cycle du combustible et en particulier sur la puissance résiduelle. Les objectifs sont multiples : renforcement des dossiers de sûreté des centrales, redimensionnement des systèmes d'évacuation de la chaleur résiduelle en centrale, en transport et en piscine de stockage, réévaluation des temps d'arrêt du réacteur pour rechargement.

Les enjeux de la thèse touchent donc autant l'économie que la sûreté. Prévoir finement la puissance résiduelle et son incertitude permettra aux industriels de réduire les marges liées au dimensionnement des circuits d'évacuation de chaleur en réacteur et en piscine de stockage ainsi que revoir à la baisse l'évaluation du temps d'attente nécessaire au refroidissement du combustible en réacteur avant que l'équipe de maintenance puisse intervenir. Le développement d'une méthode de calcul de la puissance résiduelle et de son incertitude claire, générale et validée sera certainement mieux perçu par les autorités de sûreté.

Les industriels ne peuvent pas concevoir leurs installations nucléaires vis-à-vis de la puissance résiduelle sur la seule base d'expériences. Celles-ci coûtent très chers et il en faudrait un nombre considérable pour illustrer tous les cas qu'il est possible de rencontrer. C'est pourquoi a été développé le formulaire de calcul du cycle DARWIN [1].

Cependant, un code doit être validé expérimentalement afin de savoir s'il représente bien les phénomènes qu'il est sensé modéliser [2][3]. Ce formulaire bénéficie d'un important dossier de qualification concernant les réacteurs à eau pressurisée, en particulier en ce qui concerne

## INTRODUCTION

les expériences de bilan matière [4], et dossier un peu plus restreint pour les réacteurs à eau bouillante [5]. Au contraire, le dossier de qualification des réacteurs à neutrons rapides est faible. Il n'est composé que de deux expériences de bilan matière sur les assemblages fissiles [6][7], un sur les fertiles [8] et deux types d'expérience de puissance résiduelle : les courbes de fission élémentaire [9][10][11] et la puissance résiduelle dégagée d'un réacteur [12]. Pour étendre le domaine de qualification du formulaire DARWIN, il est nécessaire d'avoir un code qui peut calculer les incertitudes de calcul de la puissance résiduelle. De plus, cela permettrait d'améliorer les comparaisons entre le code et le calcul afin de savoir si la modélisation est biaisée ou non. Pour le moment, les incertitudes utilisées ne proviennent que de l'avis d'experts.

Des études de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle ont été menées à partir de la fin des années 70 [13][14][15][16][17][18][19][20][21][22]. Ces études ne s'intéressent qu'à l'incertitude de la puissance résiduelle provenant des produits de fission. Certains paramètres importants des réacteurs comme les sections efficaces ne sont pas prises en compte car leur apport est considéré comme négligeable dans la puissance résiduelle. L'amélioration des données nucléaires demande à ce que cette hypothèse soit revue. La modélisation qui est faite de l'évolution du combustible entraîne des biais qui ne sont pas chiffrés.

C'est ce qui justifie cette étude. Elle consiste à développer une méthode déterministe de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la concentration isotopique en évolution et sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides et à l'appliquer sur une expérience d'analyse de l'évolution des concentrations sous irradiation (TRAPU) et sur une expérience de puissance résiduelle (PUIREX) toutes deux réalisées dans le réacteur PHENIX.

La démarche est développée dans quatre parties.

Dans la première partie de la démarche sont réunis plusieurs éléments descriptifs (matériels et méthodes) nécessaires à la compréhension de la thèse. Le premier paragraphe est dédié à la description du phénomène de la puissance résiduelle : sa découverte, son explication, les premières expériences de quantification de la chaleur, ses différentes modélisations et enfin



## INTRODUCTION

l'évaluation à ce jour de sa valeur et du calcul de son incertitude. La suite de cette partie décrit le formulaire du CEA dédié aux calculs de puissance résiduelle, son dossier de qualification, la description de la centrale nucléaire à neutrons rapides PHENIX et les essais de puissance résiduelle et de bilan matière qui s'y sont déroulés. **(PARTIE I)**

La deuxième partie de la démarche consiste à sélectionner les éléments importants de la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides afin de modéliser correctement l'évolution de celle-ci mais sans alourdir les calculs d'éléments négligeables. Sachant que la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.1.1 décrit 3852 noyaux, le but est de limiter le nombre de ces noyaux intervenant pour limiter le temps des calculs d'incertitudes développés dans la suite de l'étude.

Le but étant de propager les incertitudes des données nucléaires à travers les équations de la physique modélisant la puissance résiduelle, un premier objectif est de contrôler que cette modélisation physique est bien représentative de la réalité. Pour cela, les calculs du formulaire du cycle DARWIN, considéré comme la référence, sont confrontés aux mesures d'un essai réel de puissance résiduelle. Il est choisi de modéliser l'essai de puissance résiduelle PUIREX réalisé sur le réacteur PHENIX en 2008. En effet, ce réacteur est un bon représentant de la filière des réacteurs à neutrons rapides ; l'essai PUIREX mesure la puissance résiduelle provenant du réacteur entier et cela dès les temps courts de refroidissement; et enfin, l'essai de 2008 est le plus précis et celui ayant la gamme de temps de refroidissement la plus étendue des essais de type PUIREX menés par le CEA sur PHENIX et SUPER-PHENIX. Le deuxième objectif de ce chapitre est d'utiliser les résultats de la modélisation de l'essai PUIREX pour sélectionner puis caractériser les composants du réacteur émettant le plus de puissance résiduelle suivant l'environnement neutronique, l'historique d'irradiation et la composition isotopique initiale. **(Partie II Chapitre1)**

La puissance résiduelle des différents composants du réacteur précédemment identifiés peut provenir de la décroissance de noyaux différents à cause de la variation de la concentration de ceux-ci suivant les paramètres cités ci-dessus : l'environnement neutronique, les conditions d'irradiation et les compositions isotopiques initiales. L'objectif premier est de sélectionner les noyaux de ces composants contribuant le plus à la puissance résiduelle et permettant de la décrire précisément pour des temps de refroidissement compris entre une seconde et trente ans. Pour cela, des calculs de cas représentatifs des composants et de leurs conditions

## INTRODUCTION

d'irradiation moyennes ou extrêmes sont réalisés et des critères de contribution à la puissance résiduelle sont développés et appliqués. L'objectif suivant est de modéliser l'évolution de la concentration de ces noyaux pendant l'irradiation et en refroidissement. Pour les produits de fission, cela nécessite de reproduire l'évolution des noyaux lourds fissionnant et d'établir des têtes de chaîne pour chaque masse atomique. Pour les noyaux lourds, il faut identifier les noyaux contribuant à la puissance résiduelle et ceux nécessaires à la représentation de l'évolution de ces noyaux. Enfin, le dernier objectif est de réévaluer l'hypothèse des études antérieures concernant l'aspect négligeable de l'effet de capture des produits de fission sur la puissance résiduelle en comparant son impact aux nouveaux critères mis en œuvre dans le chapitre. **(Partie II Chapitre 2)**

La troisième partie de la démarche a pour objectif de sélectionner une méthode générique de propagation des incertitudes, de l'adapter au problème de la propagation de l'incertitude des données nucléaires et des concentrations isotopiques sur le bilan matière en fin d'irradiation et sur la puissance résiduelle puis de développer un outil permettant l'automatisation des calculs.

Le but du premier chapitre est de savoir s'il est possible d'utiliser un code existant pour propager les incertitudes des données nucléaires sur la concentration isotopique et sur la puissance résiduelle. Pour cela, une liste des codes existants permettant la propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle ainsi qu'une liste des codes d'évolution pour lesquels une procédure de propagation des incertitudes pourrait être facilement adaptée, sont dressées et analysées. Les critères permettant d'analyser ces codes sont : la possibilité et la rapidité de la mise en place du programme ainsi que la capacité du programme à propager les incertitudes des données nucléaires sélectionnées sur les variables souhaitées : la concentration isotopique et la puissance résiduelle. Ensuite, sachant que la propagation des incertitudes peut être réalisée suivant deux méthodes (déterministe ou stochastique), une analyse de la rapidité des calculs de ces deux méthodes est menée afin de sélectionner la méthode qui sera développée durant la thèse. **(Partie III Chapitre 1)**

Suite à l'analyse menée dans le chapitre 1 de la partie III, un code déterministe de propagation des incertitudes des données nucléaires est développé. Il permet de calculer l'incertitude du bilan matière et de la puissance résiduelle mais aussi d'analyser les données nucléaires responsables de cette incertitude. Il est dénommé CYRUS pour Cycle Reactor Uncertainty and Sensitivity. Pour cela, les équations de propagation déterministes sont adaptées aux

## INTRODUCTION

calculs d'évolution et au calcul de la puissance résiduelle. Ces équations font intervenir les notions de matrice de sensibilité et de matrice de covariance. Les matrices de covariances, explicitant l'incertitude et les possibles corrélations entre incertitudes des données nucléaires sont construites d'après les données existantes (bibliothèque de données JEFF3.1.1) et d'après des avis d'experts. Les matrices de sensibilité, explicitant la variation d'un résultat par rapport à ses paramètres, sont calculées. Pour cela, une méthode de calcul des sensibilités ainsi qu'une méthode de calcul des concentrations isotopiques sont sélectionnées suivant des critères de précision et de rapidité d'exécution. **(Partie III Chapitre 2)**

Le dernier chapitre met en œuvre une étape importante du développement du code CYRUS : sa validation. La méthode déterministe nécessite en effet des hypothèses simplificatrices qu'il faut justifier afin de pouvoir avoir confiance dans les résultats. Les hypothèses concernent la linéarité du résultat aux paramètres et la distribution du résultat suivant une loi normale. Pour les justifier, des cas tests représentatifs des chaînes de réaction décrites dans le chapitre 2 sont mis en place et analysés. Ensuite, le code CYRUS est comparé à un code stochastique en cours de développement par le CEA (URANIE/MENDEL) pour la fission élémentaire de  $^{235}\text{U}$  par un neutron thermique. **(Partie III Chapitre 3)**

La quatrième partie de la démarche concerne la mise en application du code CYRUS sur plusieurs exemples de manière à valider expérimentalement le formulaire de calcul du cycle DARWIN sur les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium, mais aussi pour analyser la précision des données nucléaires et le comportement de la propagation des incertitudes.

Le but de la première application est de qualifier le code DARWIN pour le calcul de la puissance résiduelle d'un cœur entier d'un réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium. L'essai PUIREX de 2008 est utilisé pour comparer la mesure et le calcul de la puissance résiduelle assortis de leurs incertitudes. Si la comparaison des valeurs calcul/expérience de la puissance résiduelle est réalisée dans la partie II, et l'incertitude expérimentale traitée dans la partie I, ce chapitre met en place un jeu de données d'entrée permettant le calcul des incertitudes, grâce au code CYRUS, de la puissance résiduelle calculée. Pour créer ce jeu de données, une série de simplifications de la modélisation utilisée pour le calcul de la valeur de la puissance résiduelle par le code DARWIN est réalisée afin d'intégrer les temps de calculs de l'incertitude dans le temps imparti de la thèse. L'historique d'irradiation est simplifié en un

## INTRODUCTION

seul palier et seuls les temps d'irradiations extrêmes et moyens de chaque type d'assemblage du cœur sont étudiés. **(Partie IV paragraphe I)**

La deuxième application est réalisée sur l'essai TRAPU afin de valider expérimentalement le code DARWIN sur un essai de bilan matière (analyses isotopiques de tronçons d'aiguilles irradiées). Pour cela, l'historique d'irradiation est simplifié de la même manière que dans le chapitre précédent et cette simplification est analysée. De plus, les chaînes de réaction développées dans la partie II ont été simplifiées et adaptées à cet essai. La combustion massique a été analysée en prenant en compte les incertitudes de façon à pouvoir recalculer le flux neutronique. Enfin, un retour sur la valeur et la précision des données nucléaires est réalisé. **(Partie IV paragraphe II)**

La dernière application consiste à calculer puis analyser l'incertitude de la puissance résiduelle suite à la fission élémentaire d'un noyau d' $^{235}\text{U}$  sous spectre thermique. Cette étude permet d'expliquer la courbe d'incertitude obtenue dans la partie III lors de la comparaison de CYRUS avec URANIE/MENDEL. C'est aussi la possibilité de comparer les résultats de calcul aux nombreuses expériences de courbes de fission élémentaire et de valider les données de la bibliothèque JEFF3.1.1. **(Partie IV paragraphe III)**

La conclusion est suivie de plusieurs paragraphes qui permettent de revenir sur certains points de la thèse. Ils permettent, en particulier, d'illustrer un peu plus les capacités du code CYRUS dans l'analyse en profondeur de la propagation des incertitudes.

## INTRODUCTION

## **PARTIE I**

# **LA PUISSANCE RESIDUELLE : DEFINITION, EVALUATION, EXPERIENCES DE VALIDATION DANS LES REACTEURS A NEUTRONS RAPIDES**

Plusieurs outils informatiques, modélisations de phénomènes physiques et expériences sont utilisés dans la démarche de la thèse. Ce chapitre propose de faire une présentation de ceux-ci.

## **I – Rappels sur la puissance résiduelle**

### **A – Découverte, explication et modélisation du phénomène de puissance résiduelle**

Le terme « puissance résiduelle » est lié au domaine des réacteurs nucléaires. Néanmoins, ce phénomène étant lié à la radioactivité, il est possible de lui donner une origine plus lointaine que le début des recherches sur les réacteurs expérimentaux ou électrogènes, bien avant la découverte de la fission, et bien avant la découverte de la structure de l'atome. C'est Pierre Curie qui, en 1903, est le premier à mesurer une émission de chaleur dans les sels de radium [1]. Il relie ce dégagement de chaleur à une énergie interne qu'il qualifie de phénoménale étant donné le nombre de calorie dégagée pour la faible masse de chlorure de baryum radifère utilisée. Suite à cette expérience, O. Lodge [2] propose une explication consistant à relier ce phénomène à la théorie nouvelle de la radioactivité de Rutherford. Rutherford lui-même, dans son livre Radio-activity [3], confirme le lien entre l'activité du radium et la chaleur dégagée par celui-ci. Ainsi, même si le terme n'existe pas encore, le phénomène est découvert et expliqué dès le début du vingtième siècle.

Rutherford sur le thorium et Becquerel sur l'uranium mettent en place simultanément la même expérience [3]. Ils commencent par mesurer l'activité de matrices dans lesquels se trouvent des atomes de thorium et d'uranium. Ensuite, par un traitement chimique, ils séparent les atomes de thorium et d'uranium de leur matrice et observent que les atomes extraits perdent leur activité alors que les résidus de la matrice la conservent. Enfin, après plusieurs jours d'attente, les atomes d'uranium et de thorium ont de nouveau la même activité qu'au début de l'expérience. C'est par celles-ci que Rutherford propose l'explication du phénomène d'évolution par les chaînes de décroissance et formule les équations d'évolution [3].

Ces équations sont souvent mentionnées sous le nom de Bateman après que celui-ci ait proposé une formulation générale de la solution des équations différentielles dans le cas de la décroissance en 1910 [4]. En 1949, Robinson propose une solution générale prenant en

compte la fission spontanée et la transmutation due à un flux de neutrons [5]. Il est intéressant de noter que c'est le nom de Bateman qui a été conservé pour les équations que nous utilisons alors que celles qu'il a résolues ne prenaient en compte que les décroissances ; les neutrons et leurs réactions étant encore inconnus.

## B – Définition générale actuelle

La puissance résiduelle, telle que définie par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) est la « puissance thermique développée par un réacteur à l'arrêt, provenant essentiellement de la radioactivité du combustible nucléaire et des autres matériaux, ainsi que des fissions résiduelles » [6].

Il faut distinguer deux types de fission résiduelle : les fissions spontanées dues à l'instabilité des noyaux transuraniens et les fissions induites par un neutron appelé « neutron retardé ». Ce neutron, tirant son nom du fait qu'il est libéré bien après le moment de la fission à la différence des neutrons « prompt », provient des produits de fission ayant une voie de décroissance par émission d'un bêta et d'un neutron. Il a une probabilité non-nulle d'engendrer la fission d'un noyau lourd. La fission spontanée est négligée car la quantité d'énergie libérée est très faible due aux périodes extrêmement longue de ses contributeurs. La fission induite par les neutrons retardés dépend de produits de fission dont les périodes de décroissance sont courtes : inférieures à la centaine de secondes. Cet effet est donc limité aux temps de refroidissement très courts. La **figure I.1** présente la comparaison de la puissance résiduelle due à la radioactivité avec celle due aux fissions résiduelles induites dans le cas d'un réacteur à eau pressurisée. Il est clair que si l'impact peut être important à la chute des barres, il devient négligeable après 20 secondes de refroidissement.

Or, l'effet des fissions résiduelles est beaucoup moins important dans les réacteurs à neutrons rapides. Ceci est dû à une proportion de neutrons retardés (parmi tous les neutrons retardés et prompts produits) beaucoup plus faible pour la fission rapide du  $^{239}\text{Pu}$  que pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$  (environ 2 fois moins).

En conséquence, la puissance résiduelle due aux fissions retardées sera négligée dans la suite de la thèse.



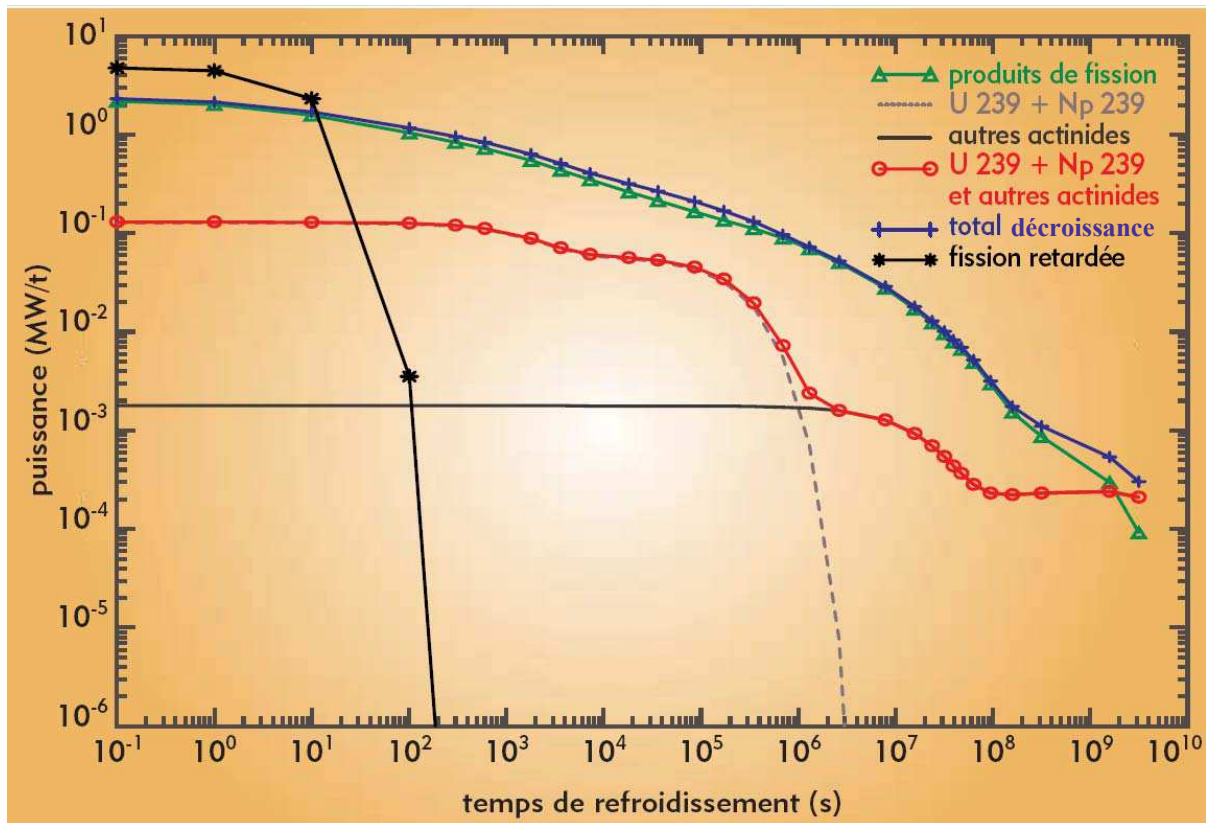


Fig. I.1 : Différentes contributions à la puissance résiduelle calculées pour un réacteur à eau pressurisée (UOx enrichi à 3,5 % en  $^{235}\text{U}$ , combustion massique : 33 000 MWj/t). [7]

## C – Aspects de physique fondamentale

La puissance résiduelle provient de la radioactivité du combustible irradié, de l'activation des structures, mais aussi, dans le cas des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium, de l'activation du sodium. La radioactivité est l'expression d'une réaction de perte d'énergie d'un noyau instable afin de se diriger vers un état de plus grande stabilité. Plusieurs types de décroissances sont possibles parmi lesquelles les plus importantes sont : la décroissance  $\beta^-$  pour un noyau ayant un excès de neutrons, la décroissance  $\beta^+$  pour un noyau ayant un excès de protons, la décroissance  $\gamma$  pour un noyau excité et la décroissance  $\alpha$  pour les noyaux lourds.

Le combustible des réacteurs nucléaires est constitué de noyaux lourds. La particularité de certains de ces noyaux est d'avoir une forte probabilité de fissionner suite à l'absorption d'un neutron. La fission d'un de ces noyaux produit généralement deux fragments de fission

chacun ayant un fort excès de neutrons (voir **figure I.2**). L'occurrence d'une fission ternaire (trois fragments de fission) est comprise entre 0,2 et 0,5 % selon le noyau et selon l'énergie du neutron incident [8]. Une grande part de l'énergie libérée par la fission se retrouve sous la forme d'énergie cinétique des fragments de fission. Le reste de cette énergie est emportée par les gamma, bêta, neutrons et antineutrino émis lors de la décroissance de ces fragments et par les neutrons et gamma « prompt ».

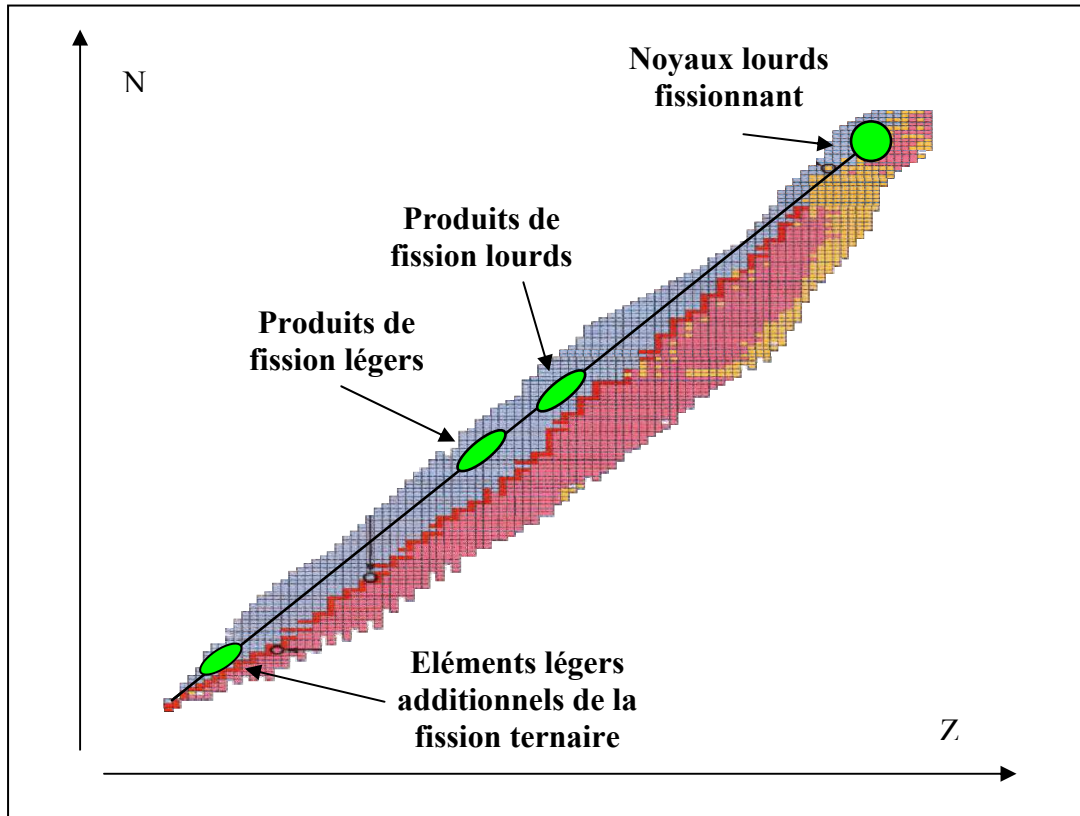


Fig I.2 : Table des noyaux et vallée de stabilité.

Les fragments de fission décroissent en émettant des rayonnements  $\beta^-$  et  $\gamma$  afin de rejoindre la vallée de stabilité. Certains fragments avec un fort excès en neutrons ont la possibilité d'émettre un neutron « retardé » lors d'une décroissance  $\beta^-$  (principalement des produits de fission légers). Les actinides présents dans le cœur décroissent en émettant des rayonnements  $\alpha$ ,  $\beta^-$  et  $\gamma$  de manière à rejoindre les isotopes du noyau stable le plus lourd : le plomb. Concernant les structures et le sodium, des sections de capture des neutrons non nulles impliquent leur activation. En particulier, ce sont les constituants en quantité très faible (Co, Cr, Ni) de ces structures (Fe) qui ont le plus d'affinité avec les neutrons et qui produisent l'essentiel de la puissance résiduelle des structures. Outre les voies de décroissance

habituelles (émission de rayonnements  $\beta^-$  et  $\gamma$ , émission de neutrons) ces noyaux ont aussi la particularité de pouvoir émettre du tritium. Néanmoins, la puissance résiduelle des structures est constituée à 95 % par la décroissance gamma.

Tous ces éléments qui se trouvent en dehors de la vallée de stabilité tendent à y retourner. La rapidité de ce retour à la stabilité dépend de la valeur de leur période.

## D – Modélisation de la puissance résiduelle

La puissance résiduelle étant un enjeu majeur de la sûreté – que ce soit en réacteur, en piscine ou en transport – elle a très vite fait l’objet d’études de façon à prévoir la quantité de chaleur à évacuer dans les installations nucléaires et ainsi de pouvoir dimensionner les systèmes de refroidissement.

### 1) Lois statistiques

Le nombre de noyaux intervenant durant les premiers jours du refroidissement est si grand qu’une manière d’obtenir une bonne évaluation de la puissance résiduelle est de traiter les noyaux de manière statistique. Cette méthode est considérée valide durant les premiers jours, suivant la référence jusqu’à : 10 jours [9], 50 jours [10] voire 100 jours [11].

Cette méthode est basée sur les travaux précurseurs de WAY et WIGNER [12]. Ceux-ci consistent à calculer la quantité de rayonnement bêta et d’énergie totale émises après une fission pour un temps  $t$  de refroidissement.

$$\beta(t) = \int_0^{E_m} N(E, t) \lambda(E) dE$$

$$3B(t) + \Gamma(t) = \int_0^{E_m} E N(E, t) \lambda(E) dE$$

Avec :

$\beta(t)$  : l’activité bêta après  $t$  secondes de refroidissement,

## PARTIE I

$3B(t) + \Gamma(t)$  : l'énergie totale émise qui prend en compte la part des neutrinos évaluée à deux fois l'énergie bêta après  $t$  secondes de refroidissement,

$N(E,t) dE$  : le nombre de produits de fission après  $t$  secondes de refroidissement pouvant décroître avec une énergie comprise entre  $E$  et  $E + dE$ ,

$\lambda(E)$  : la constante de décroissance du noyau pouvant décroître avec une énergie  $E$ ,

$E_m$  : l'énergie de désintégration la plus grande.

La suite consiste à proposer, à partir de la théorie, une expression pour  $N$  et  $\lambda$ . La conclusion de ces travaux est la formulation suivante de l'énergie totale considérée comme une bonne estimation pour des temps de refroidissement supérieurs à 1 jour :

$$3B(t) + \Gamma(t) = (3,9 t^{-1,2} + 11,7 t^{-1,4}) 10^{-6} \text{ MeV} / s$$

Avec  $t$  en jours.

De ces travaux ont été déduits d'autres lois [9][11] :

$$B(t) = 1,26 t^{-1,2} \text{ MeV} / s$$

$$\Gamma(t) = 1,40 t^{-1,2} \text{ MeV} / s$$

Et finalement, la loi connue sous le nom de loi de WAY et WIGNER, mais aussi sous le nom de loi de BORST et WHEELER, qui propose une modélisation de la puissance résiduelle adaptée aux réacteurs à neutrons thermiques et à combustible UOX, pour un temps de refroidissement supérieur à 10 secondes [13] :

$$PR = 3,2843.10^{-3} E_r P_0 \left[ t^{-0,2} - (t + T)^{-0,2} \right]$$

Avec :

$PR$  : puissance résiduelle,

$P_0$  : puissance nominale,

$E_r$  : Energie récupérée de la fission en MeV,

$T$  : temps d'irradiation en secondes,

$t$  : temps de refroidissement en secondes.

KHAN [13] a rassemblé d'autres formules qui sont basées sur des ajustements d'expériences ou des affinements de la formule précédente.

## 2) Courbes de fission élémentaire

Les courbes de fission élémentaire (CFE) représentent la puissance résiduelle émise lors de la fission d'un seul noyau lourd. Plutôt que les Watts, l'unité utilisée pour les exprimer est le MeV/s/fission. Cependant, pour une meilleure lisibilité des graphiques, c'est le produit de la puissance résiduelle (autrement dit la CFE) et du temps de refroidissement qui est représenté. Il est exprimé en MeV/fission.

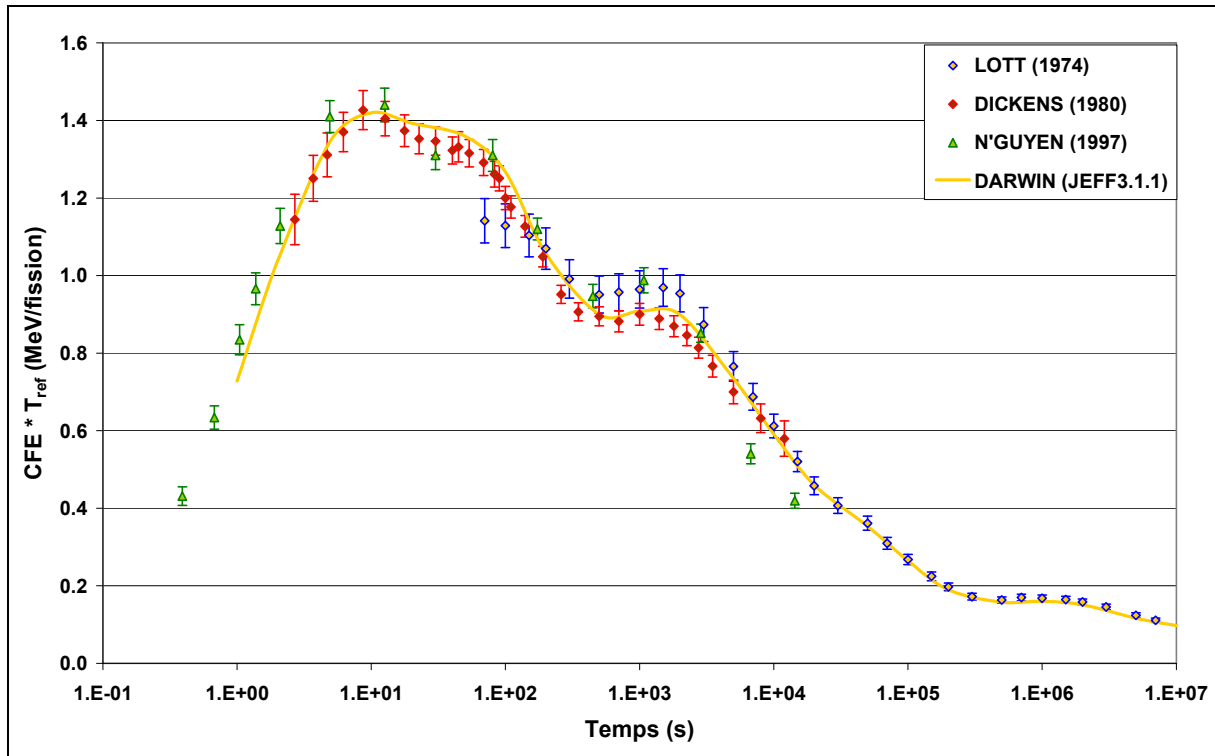


Fig. I.3 : Produit de la courbe de fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$  et du temps de refroidissement pour une fission thermique [14][15][16] en fonction du temps de refroidissement.

La **figure I.3** présente un exemple du produit de la courbe de fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$  et du temps de refroidissement dans le cas d'une fission par un neutron thermique. Cette courbe est très caractéristique de l'émission moyenne de chaleur résiduelle suivant une fission.

## PARTIE I

Les courbes de fission élémentaire varient fortement d'un noyau lourd à un autre et légèrement d'une énergie du neutron incident à une autre (voir **figure I.4**). Cela est lié à la variation des rendements de fission en fonction de ces paramètres. Toutes les courbes de fission élémentaire pour lesquelles des données expérimentales existent, sont tracées en ANNEXE 4.

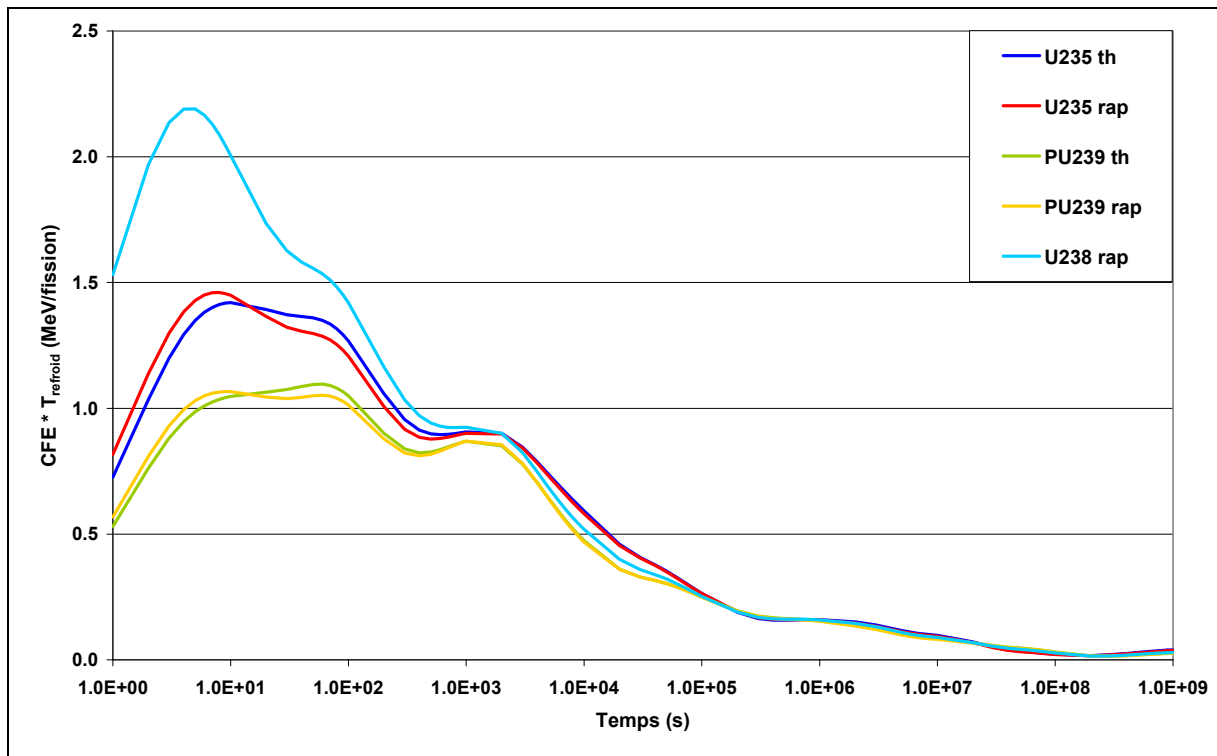


Fig. I.4 : Comparaison des courbes de fission élémentaire des principaux noyaux lourds pour des fissions dans le domaine thermique ou rapide.

Il existe deux méthodes d'obtention des courbes de fission élémentaire : les mesures spectrométriques (bêta et gamma) [15][16] ou les mesures calorimétriques [14]. Pour ces deux types de mesure, des échantillons quasiment purs ( $> 90 \%$  en élément étudié) sont irradiés dans un réacteur de recherche, puis sont transférés dans l'appareil de mesure grâce à un système pneumatique [17] ce qui permet de réaliser des mesures (de chaleur ou de spectre bêta et gamma) aux temps de refroidissement courts. Ces mesures permettent ensuite de déduire la puissance résiduelle totale issue de l'échantillon, et associée à la mesure du taux de fission de l'échantillon, permet de calculer la courbe de fission élémentaire par déconvolution de l'intégrale suivante :

## PARTIE I

$$PR(T_{ref}, T_{irrad}) = \tau_f \int_{T_{ref}}^{T_{irrad} + T_{ref}} f(t) dt$$

Avec,

$T_{ref}$  : le temps de refroidissement,

$T_{irrad}$  : la durée de l'irradiation,

$f(t)$  : la courbe de fission élémentaire,

$PR(T_{ref}, T_{irrad})$  : la puissance résiduelle mesurée au temps de refroidissement  $T_{ref}$  précédée d'une irradiation  $T_{irrad}$ ,

$\tau_f$  : le taux de fission du noyau lourd étudié.

$T_{ref}$  et  $T_{irrad}$  ont la même origine  $t = 0$  qui est le début du palier d'irradiation.

De ces mesures sont ajustées des lois exponentielles, ou plutôt des sommes de lois exponentielles, en fonction du temps de refroidissement ce qui permet une utilisation des courbes de fission élémentaire plus facile pour réaliser des calculs de puissance résiduelle sur un réacteur ou sur un assemblage irradié. Ceci est appelé lisser la courbe. Ces ajustements ont été abondamment utilisés durant les années 70 et jusque dans les années 90. Elles ont, dans un premier temps, pris le relais des lois statistiques car elles permettent de modéliser plus finement la puissance issue des fissions des différents noyaux lourds. Cependant, elles ont perdu du terrain suite à l'augmentation des mesures des données nucléaires des produits de fission à vie courte.

Le principe d'utilisation des courbes de fission élémentaire pour le calcul de la puissance résiduelle est le suivant. Premièrement, les taux de fission moyens de tous les noyaux lourds sont calculés pour les différents paliers d'irradiation (hypothèse nécessaire de puissance constante sur chaque palier). Le calcul de ces taux de fission fait appel aux résolutions des équations d'évolution pour les noyaux lourds ce qui est nettement moins contraignant que la résolution de ces équations pour les produits de fission étant donné que les données nucléaires des noyaux lourds sont mieux connues et qu'il n'y a qu'un petit nombre de noyaux lourds participant aux fissions de manière non-négligeable. Deuxièmement, il faut intégrer chacune des courbes de fission élémentaire sur le temps approprié [18] puis multiplier par le taux de fission :

## PARTIE I

$$PR(T_{ref}, T_{irrad}) = \sum_{NL} \tau_{f,NL} \int_{T_{ref}}^{T_{irrad} + T_{ref}} f_{NL}(t) dt$$

Avec,

NL : les noyaux lourds,

La **figure I.5** justifie le calcul de l'intégrale précédente. Le but est de calculer la puissance résiduelle au temps  $t = t_{in} + t_{réf}$ . Une fission au temps  $t = 0$  induit une puissance résiduelle égale à  $f(t_{in} + t_{réf})$  au temps  $t$ . Une fission au temps  $t_{in}$  induit une puissance résiduelle égale à  $f(t_{réf})$  au temps  $t$ . Or, la courbe de fission élémentaire n'a subi qu'une translation entre le temps  $t = 0$  et le temps  $t = t_{in}$ . Donc la puissance  $f(t_{réf})$  de la fission au temps  $t_{in}$  est égale à la puissance  $f(t_{réf} - t_{in})$  de la fission au temps  $t = 0$ . Ainsi, il est possible de calculer la puissance résiduelle en calculant l'intégrale de la courbe de fission élémentaire entre le temps  $t_{réf} = t - t_{in}$  et le temps  $t = t_{in} + t_{réf}$ .

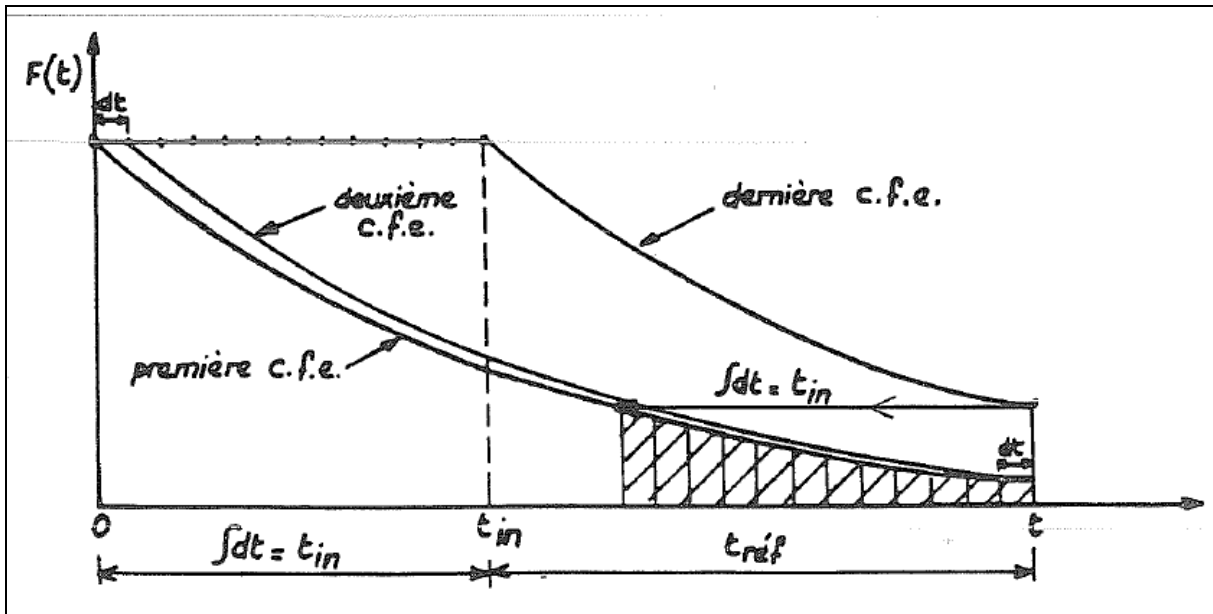


Fig. I.5 : Intégration d'une courbe de fission élémentaire pour le calcul de la puissance résiduelle. ( $t_{in}$  : durée de l'irradiation,  $t_{réf}$  : temps de décroissance,  $F(t)$  : CFE =  $f(t)$ ) (communication interne)

Une remarque très importante est que les courbes de fission élémentaire ne prennent pas en compte l'effet de capture neutronique des produits de fission (cet effet sera étudié dans la démarche de la thèse). Cet effet ajoute une quantité de puissance résiduelle non-négligeable pour des temps de refroidissement compris entre  $10^5$  secondes (1 jour) et  $10^9$  secondes (30



ans). Il est donc nécessaire de corriger les résultats obtenus avec les courbes de fission élémentaires pour prendre en compte cet effet.

### 3) Calcul de la concentration des noyaux

Les méthodes précédentes étaient utilisées à défaut de pouvoir utiliser la méthode suivante. En effet, celle-ci demande de connaître un nombre considérable de données nucléaires. Le but est de réaliser le calcul d'évolution de tous les noyaux présents dans le combustible au cours de l'irradiation et du refroidissement. Pour cela, il est nécessaire de résoudre les équations d'évolution suivantes.

Sous irradiation :

$$\begin{cases} \frac{dN_i}{dt}(t) = \sum_F N_F \phi \sigma_F^f Y_{F \rightarrow i}^i + \sum_j (\phi \sigma_{j \rightarrow i}^c + \lambda_{j \rightarrow i}) N_j - (\phi \sigma_i^c + \lambda_i) N_i \\ N_i(t=0) = N_i^0 \end{cases}$$

Le noyau i provient de la fission des actinides, de la décroissance bêta ou bêta + neutron d'un noyau plus instable ou de la capture (principalement capture radiative ou (n,2n)) d'un autre noyau.

En refroidissement :

$$\begin{cases} \frac{dN_i}{dt}(t) = \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j - \lambda_i N_i \\ N_i(t=0) = N_i^0 \end{cases}$$

Le noyau i provient de la décroissance bêta ou bêta + neutron d'un noyau plus instable.

Avec :

$N_i$  : la concentration du noyau i,

$N_F$  : la concentration du noyau fissile F,

$N_i^0$  : la concentration initiale en noyau i,

## PARTIE I

$\sigma_i^c$  : section de capture du noyau i,

$\sigma_F^f$  : section de fission du noyau F,

$\sigma_{i \rightarrow j}^c = \sigma_i^c \text{br}_{i \rightarrow j}$  et  $\lambda_{i \rightarrow j} = \lambda_i \text{br}_{i \rightarrow j}$ , avec  $\text{br}_{i \rightarrow j}$  le rapport de branchement du noyau i vers j,

$\lambda_i$  : la constante de décroissance du noyau i,

$\Phi$  : le flux neutronique n/cm<sup>2</sup>/s,

$Y_{F \rightarrow i}^f$  : le rendement de fission indépendant du noyau lourd F vers le produit de fission i.

Ensuite, la puissance résiduelle se déduit de la concentration des noyaux par la formule suivante :

$$PR(t) = \sum_i N_i(t) \lambda_i E_i$$

Avec :

$E_i$  : l'énergie moyenne de décroissance du noyau i.

Suivant le but recherché, différentes méthodes existent afin de résoudre ces équations : la formulation analytique, la méthode de développement en série de l'exponentielle de matrice, l'analyse numérique d'approximation de solutions Runge-Kutta.

### a) Résolution analytique

Comme cela est très souvent le cas avec les équations différentielles, il n'y a pas de solution analytique pour le cas général. Cela est dû au fait que les chaînes de filiation sont fermées comme il est illustré dans la **figure I.6**. Sur cette figure, l'<sup>235</sup>U peut produire de l'<sup>236</sup>U en capturant un neutron. L'<sup>236</sup>U peut produire de l'<sup>235</sup>U en capturant un neutron et en relâchant deux. Ainsi, un noyau d'<sup>235</sup>U peut devenir de l'<sup>236</sup>U puis redevenir de l'<sup>235</sup>U. Nous ne pouvons donc pas résoudre le système d'équations avec les méthodes analytiques habituelles. Néanmoins, sous la condition de « chaînes de filiation ouvertes », il est possible d'obtenir une solution dans laquelle le i<sup>ème</sup> terme n'est calculé qu'à partir des termes déjà calculés [19]. Cette condition est peu contraignante pour les produits de fission car les réactions nécessaires à la représentation de l'évolution des noyaux contribuant à la puissance résiduelle durant l'irradiation ne permettent pas de créer de chaîne fermée. A l'inverse, cette hypothèse a beaucoup plus d'impact sur les noyaux lourds puisqu'elle oblige à se passer de la

## PARTIE I

représentation de la décroissance alpha, or cette réaction est fortement présente dans les chaînes de noyaux lourds.

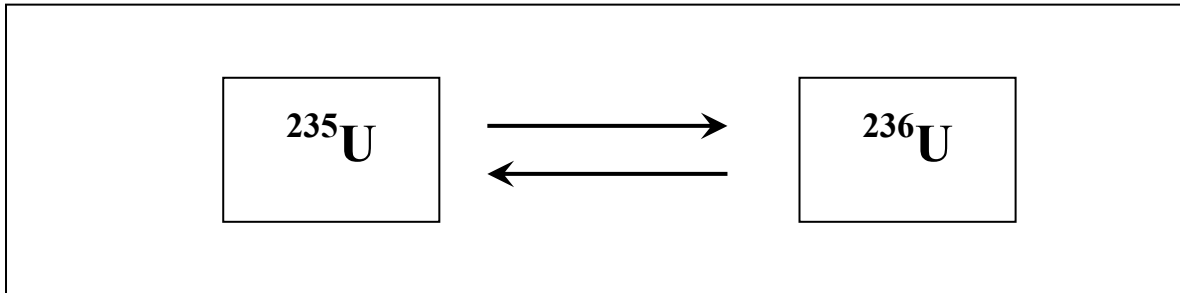


Fig. I.6 : Illustration d'une chaîne de réaction fermée (autrement dit, en boucle).

Le système d'équations est réécrit de la manière suivante pour les produits de fission :

$$\begin{cases} \frac{dN_i}{dt}(t) = b_i + \sum_{k=1}^i C_{ik} N_k(t) - C_{ii} N_i(t) \\ N_i(t=0) = N_i(0) \end{cases}$$

Avec

$$\begin{aligned} C_{ik} &= Br_{k \rightarrow i} \lambda_k + Br'_{k \rightarrow i} \sigma_k^{capt} \phi \\ C_{ii} &= \lambda_i + \sigma_i^{abs} \phi \end{aligned}$$

La solution à cet énoncé peut être mise sous la forme :

$$N_i(t) = N_i^S + \sum_{j=1}^i F_{ij} e^{-C_{ij}t}$$

Avec

## PARTIE I

$$N_i^S = \frac{1}{C_{ii}} \left[ b_i + \sum_{k=1}^{i-1} C_{ik} N_k^S \right] \quad \text{si } C_{ii} \neq 0$$

$$F_{ik} = \frac{1}{C_{ii} - C_{kk}} \sum_{j=k}^{i-1} C_{ij} F_{jk} \quad \text{si } C_{ii} \neq C_{kk} \quad \text{et } 1 \leq k \leq i-1$$

$$F_{ii} = N_i(0) - N_i(S) - \sum_{j=1}^{i-1} F_{ij}$$

Deux cas particuliers sont à prendre en compte.

Premièrement, si  $C_{ii} = C_{kk}$  et  $C_{ii} \neq 0$  (le taux de disparition du noyau k est le même que celui du noyau i et ce taux de disparition est non-nul), alors la solution devient :

$$N_i(t) = t e^{-C_{ii}t} \sum_{k=1}^{i-1} \sum_{j=k}^{i-1} C_{ij} F_{jk} + N_i(0) e^{-C_{ii}t}$$

Deuxièmement, si  $C_{ii} = 0$  (le taux de disparition du noyau i est nul = le noyau i est stable), alors la solution devient :

$$N_i(t) = N_i^S - \sum_{k=1}^{i-1} F_{ik} e^{-C_{kk}t} + F_{ii}t$$

Avec

$$N_i^S = N_i(0) + \sum_{k=1}^{i-1} F_{ik}$$

$$F_{ik} = -\frac{1}{C_{kk}} C_{ij} F_{jk}$$

$$F_{ii} = b_i + \sum_{j=1}^{i-1} C_{ij} N_j^S$$

### b) Résolution par l'exponentielle de matrice

Cette méthode est plus orientée programmation et utilisation des outils de calcul formel afin de résoudre rapidement cette équation. En utilisant l'écriture matricielle, l'expression suivante est obtenue pour la solution du système :

## PARTIE I

$$N(t) = e^{Mt} N(0)$$

L'approximation dans cette méthode provient du développement en série de l'exponentielle de matrice, car il faut choisir un ordre auquel s'arrêter :

$$e^{Mt} = \sum_i \frac{1}{i!} M^i t^i$$

Le logiciel SCILAB nous permet de mettre en œuvre cette méthode. SCILAB est un logiciel libre de calcul numérique de haut niveau. Historiquement développé par des chercheurs de l'INRIA et de l'ENPC en 1990, il est actuellement développé et maintenu par la Fondation de coopération scientifique Digiteo [20].

Le calcul fait appel à une bloc-diagonalisation préliminaire de l'exponentielle de matrice suivie d'une approximation de Padé sur chaque bloc.

### c) Résolution numérique Runge-Kutta

La méthode numérique Runge-Kutta est très connue et utilisée pour tout problème d'équation différentielle n'ayant pas de solution analytique. C'est une méthode approchée mais néanmoins précise et rapide [21].

Considérons le problème suivant :

$$\begin{cases} y' = f(t, y) \\ y(t=0) = y^0 \end{cases}$$

La méthode Runge-Kutta d'ordre 4 (RK4) est donnée par l'équation :

$$y_{n+1} = y_n + \frac{h}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4)$$

Où

$$\begin{aligned}k_1 &= f(t_n, y_n) \\k_2 &= f\left(t_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_1\right) \\k_3 &= f\left(t_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_2\right) \\k_4 &= f(t_n + h, y_n + hk_3)\end{aligned}$$

L'idée est que la valeur suivante  $y_{n+1}$  est approchée par la somme de la valeur actuelle  $y_n$  et du produit de la taille de l'intervalle  $h$  par la pente estimée. La pente est obtenue par une moyenne pondérée de pentes :

- $k_1$  est la pente au début de l'intervalle,
- $k_2$  est la pente au milieu de l'intervalle, en utilisant la pente  $k_1$  pour calculer la valeur de  $y$  au point  $t_n + h/2$  par le biais de la méthode d'Euler,
- $k_3$  est de nouveau la pente au milieu de l'intervalle, mais obtenue cette fois en utilisant la pente  $k_2$  pour calculer  $y$ ,
- $k_4$  est la pente à la fin de l'intervalle, avec la valeur de  $y$  calculée en utilisant  $k_3$ .

Dans la moyenne des quatre pentes, un poids plus grand est donné aux pentes au point milieu.

$$pente = \frac{1}{6}(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4)$$

La méthode RK4 est une méthode d'ordre 4, ce qui signifie que l'erreur commise à chaque étape est de l'ordre de  $h^5$ , alors que l'erreur totale accumulée est de l'ordre de  $h^4$ . Cette méthode est implémentée dans le formulaire DARWIN.

## E – Expériences de puissance résiduelle

Les objectifs des expériences de puissance résiduelle sont multiples. Le but principal est de mesurer la quantité totale d'énergie libérée pour des temps de refroidissement courts jusqu'à des temps géologiques dans le but de dimensionner les dispositifs de refroidissement de chaque phase du combustible irradié. Mais aussi, ces études ont pour but de développer et de

tester l'efficacité des matériels de détection des radiations, de valider les connaissances acquises sur la décroissance des noyaux et sur leurs données nucléaires et de valider les formulaires de calcul neutronique.

Les premières expériences étaient réalisées sur des échantillons irradiés et la chaleur était récupérée par dosimétrie et spectrométrie, ou par calorimétrie [22][23]. Ces expériences permirent très vite d'établir un modèle permettant de prévoir la puissance libérée par les produits de fission en fonction du temps de refroidissement [12].

La première expérience date de 1942 (note de l'éditeur) [24]. Elle est réalisée au sein de la division « Projet Plutonium » (anciennement « Metallurgical Project ») dirigée par Arthur Holly COMPTON et basée à Chicago faisant partie du « Projet Manhattan » des Etats-Unis et dont le but était le développement de piles produisant du plutonium. Des échantillons de nitrate d'uranyle, obtenus par extraction à l'éther d'uranium métallique, sont irradiés sur des temps courts par des neutrons, préalablement ralentis dans de la paraffine, produits par une cible de béryllium bombardée par des deutons de 8 MeV provenant du cyclotron. Après l'irradiation, le nitrate d'uranyle est extrait de l'éther par de l'eau qui est elle-même évaporée pour récupérer la matière radioactive. La mesure des activités bêta et gamma et l'estimation de l'énergie correspondante est réalisée grâce à des compteurs Geiger-Müller, des électroscopes Lauritsen à fibres de quartz et à des absorbants de plomb. Le flux neutronique a été obtenu grâce à la mesure de l'activation de feuilles d'or. La connaissance de celui-ci et l'utilisation de la meilleure estimation de la section de fission de l' $^{235}\text{U}$  de l'époque a permis de déterminer le taux de fission. Le temps de refroidissement s'étend de 30 minutes à 3 jours sur le cyclotron de Chicago, et jusqu'à 120 jours sur celui de Saint Louis. Cependant, l'efficacité de la séparation chimique étant difficile à évaluer, il est fait mention que les résultats peuvent varier d'un facteur deux.

Plusieurs expériences ont été réalisées au sein de ce projet et les résultats (BORST [24], BRADY [25], DAY & CANNON [26]), malgré les incertitudes dues aux méthodologies et aux appareils mesures, sont cohérents avec les bibliothèques actuelles (voir **figure I.7**). Une revue exhaustive des expériences avant 1980 est réalisée par TOBIAS [27].

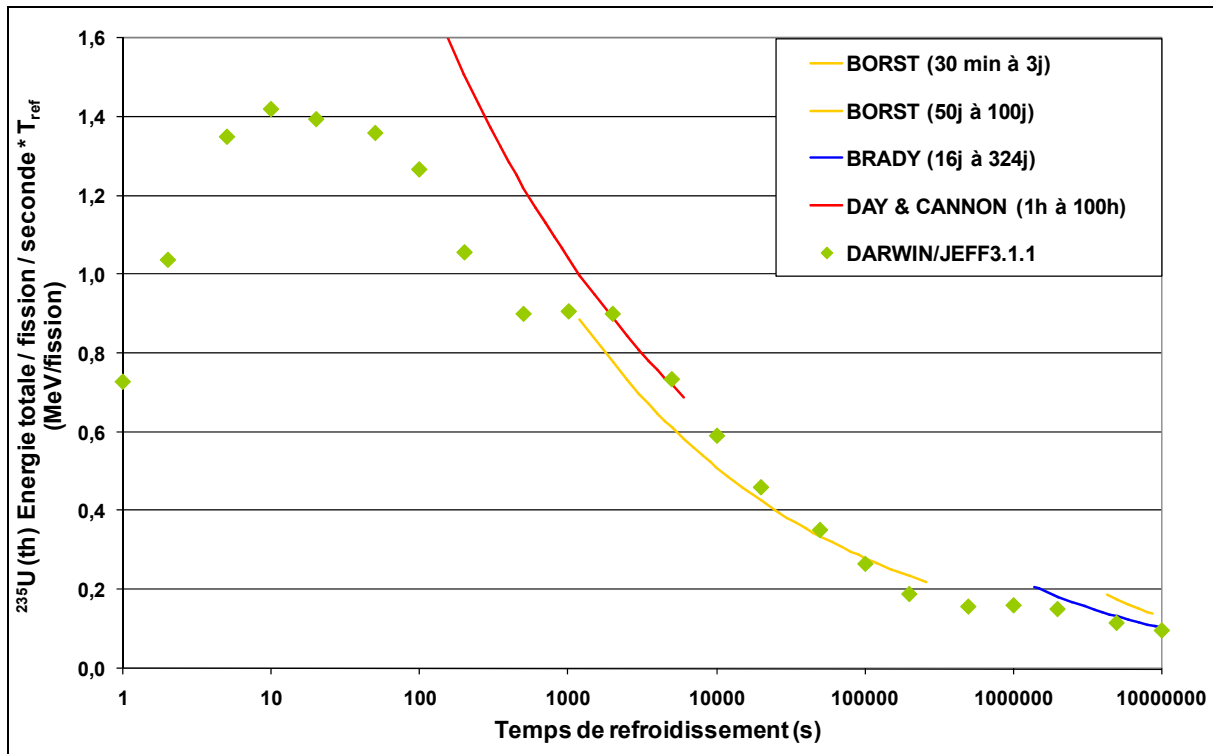


Fig. I.7 : Comparaison des premières mesures de la puissance résiduelle aux données actuelles.

Suite à l'industrialisation de l'énergie nucléaire et à la nécessité de dresser des normes de sûreté, un standard sur la puissance résiduelle a été créé par l'ANS (American Nuclear Society) en 1973 [28] et réutilisé en tant qu'avis d'expert par l'autorité de sûreté américaine (NRC : National Regulatory Commission). Celui-ci se basait sur les courbes de puissance résiduelle suivant une fission élémentaire et suivant un temps d'irradiation supposé infini pour l'isotope  $^{235}\text{U}$  fissionné par un neutron thermique. Cependant, étant donné le peu d'expériences réalisées, des écarts non cohérents et des incertitudes expérimentales importantes [29], une série d'expériences très fines [14][16][30][31][32] furent à l'origine d'un nouveau standard [28]. Par la suite, les expériences d'Akiyama pour les spectres rapides [33][34][35], ainsi que celles de l'équipe de Nguyen [15][36] ont confirmé ce standard. Toutes ces courbes sont toujours utilisées de nos jours pour valider expérimentalement les codes de calcul et les bibliothèques de données nucléaires.

Outre les expériences de puissance résiduelle sur des échantillons, des expériences plus globales sont réalisées afin de se rendre compte de la possibilité pour les codes de calcul de prévoir la puissance résiduelle d'un crayon combustible [37], d'un assemblage [38][39] ou d'un réacteur [40].



## F – Ordre de grandeur de la puissance résiduelle et de son incertitude

La puissance résiduelle d'un RNR due aux décroissances est égale à environ 7 % de la puissance nominale au moment de la chute des barres. Cette valeur décroît de façon exponentielle avec le temps de refroidissement.

Les tableaux suivants présentent les valeurs et l'incertitude de la puissance résiduelle pour différents temps de refroidissement pour un assemblage de SUPERPHENIX irradié à 100 000 MWj/t et dont le plutonium est d'origine REP vieilli 5 ans (entre le retraitement du plutonium et la mise en pile du combustible). Les calculs sont réalisés avec le code MECCYCO (Méthode d'Evolution pour le Calcul du Cycle du Combustible) [41] et avec la bibliothèque JEF-1 [42]. Cette bibliothèque est construite à partir : des rendements de fission qui proviennent des évaluations de MEEK et RIDER [43] et des données de décroissance issues principalement de la base de données ENSDF.

D'après le **tableau I.1**, la contribution des produits de fission est majoritaire pendant toute la première année de refroidissement. Les noyaux lourds, contributeurs alpha, ont un poids croissant aux temps longs à cause de leurs temps de décroissance géologiques. Cependant, la capture neutronique de l' $^{238}\text{U}$  produisant de l' $^{239}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 23,47$  min) et du  $^{239}\text{Np}$  ( $T_{1/2} = 2,355$  jours) en quantité importante durant l'irradiation, les noyaux lourds ont aussi une forte contribution à la puissance résiduelle aux temps courts.

Les aciers activés ont, eux aussi, une contribution croissante avec le temps. L'activation est principalement due à la capture neutronique du  $^{59}\text{Co}$ . Il produit du  $^{60}\text{Co}$  qui a une période de 5,27 ans et qui a une décroissance fortement énergétique : 2,82 MeV. Le  $^{59}\text{Co}$  est un composant de l'acier en très faible quantité lui permettant de mieux résister à la corrosion (0,3 % de la teneur de l'acier), cependant, la masse importante de l'acier dans le réacteur implique un effet important sur la puissance résiduelle.

Enfin, le  $^{23}\text{Na}$  s'active lui aussi en capturant un neutron. Il forme du  $^{24}\text{Na}$  qui décroît en éjectant un bêta de 500 keV et un gamma de 4 MeV avec une période courte de 14,95 heures. C'est pourquoi il ne contribue à la puissance résiduelle que pendant les premiers jours.

# PARTIE I

Principales composantes	Puissance résiduelle d'un réacteur rapide*					
	Contributions relatives en puissance et en fonction du temps de refroidissement					
	~ 0	1 jour	1 mois	6 mois	1 an	6 ans
(1) Energie $\beta+\gamma$ des P.F. **	92 %	64 %	71 %	58,7 %	57,6 %	36,3 %
(2) Energie $\beta+\gamma$ de U 9 et Np 9 (captures dans U 8)	7 %	25 %	-	-	-	-
(3) Energie $\alpha$ des noyaux lourds	0,7 %	7 %	24,7 %	36,3 %	35,7 %	52,6 %
(4) Energie $\beta+\gamma$ des structures en acier activées	0,1 %	2,3 %	6,3 %	7 %	7,3 %	11,1 %
(5) Energie $\beta+\gamma$ du Na 24 et Na 22	0,7 %	2,6 %	-	-	-	-
P.R. totale (MWth) et %/P <sub>0</sub>	210 7 %	21 0,7 %	5 0,18 %	2 0,07 %	1 0,038 %	0,2 0,008 %

Tab. I.1 : Evolution de la puissance résiduelle au cours du temps d'après des calculs réalisés pour SUPER PHENIX (communication interne).

Le **tableau I.2** présente les incertitudes du calcul de la puissance résiduelle associées aux composantes présentées dans le **tableau I.1** ci-dessus. Ces incertitudes datent de 1987 et proviennent de l'incertitude des données nucléaires de cette époque. L'incertitude sur la puissance due aux fissions retardées n'est pas présentée car elle était considérée comme négligeable compte tenu des temps de refroidissement étudiés.

L'incertitude de la puissance résiduelle provenant des produits de fission est calculée suivant la méthode utilisée pour calculer la puissance résiduelle : les courbes de fission élémentaire ou la méthode de sommation. Le **tableau I.2** montre que la méthode des courbes de fission élémentaire pour le calcul de la contribution des produits de fission génère des incertitudes plus faibles aux temps courts et plus fortes aux temps longs par rapport à la méthode de sommation.

Les incertitudes dues aux courbes de fission élémentaire sont obtenues en sommant quadratiquement quatre composantes : les écarts relatifs entre le lissage et les points expérimentaux des CFE (1), les incertitudes relatives concernant les différentes expériences d'obtention des CFE précédemment présentées (2), l'incertitude sur la prise en compte des captures par les produits de fission (incertitude due à la correction du biais) (3) et l'influence de l'assimilation des fissions des <sup>238,240,241,242</sup>Pu assimilées à celles du <sup>239</sup>Pu (car à l'époque les

## PARTIE I

calculs n'étaient réalisés qu'avec la CFE du  $^{239}\text{Pu}$ (4). Les incertitudes de ces données et leur somme quadratique (5) sont présentées dans le **tableau I.3**. Pour obtenir les valeurs présentées dans la deuxième colonne du **tableau I.2**, il faut en plus ajouter l'incertitude due au calcul du taux de fission (4,0 %).

L'incertitude de la contribution des produits de fission calculée par la méthode de sommation, est calculée par une somme quadratique sur l'incertitude des concentrations, énergies et périodes de décroissance. L'incertitude sur la concentration est prise égale à 15 % pour tous les temps de refroidissement. Cette valeur provient d'écarts calcul-mesure d'expériences d'analyses isotopiques pour des temps de refroidissement de 5 mois et 2 ans sur RAPSODIE et PHENIX. Elle néglige l'incertitude expérimentale d'analyse des combustibles estimée à 0,5 %. L'incertitude des périodes est donnée dans les bibliothèques de données nucléaires. L'incertitude des énergies de décroissance, si elle n'est pas donnée dans la bibliothèque de données nucléaires, est calculée par une somme quadratique à partir du Q de réaction (dont l'incertitude est toujours dans les bibliothèques) et de l'énergie du neutrino (dont l'incertitude est prise égale à 5 % si l'énergie du neutrino est calculée par le modèle de FERMI).

L'incertitude sur la puissance délivrée par l' $^{239}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Np}$  provient de la somme quadratique de l'incertitude du taux de capture de l' $^{238}\text{U}$  (4,7 % dans le cœur et de 10 à 30 % dans les assemblages fertiles) et de celle des données de décroissance.

La contribution alpha provient de quatre noyaux lourds principaux :  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242,244}\text{Cm}$ . L'incertitude de cette contribution provient des données de décroissance (très bien connue : < 0,3 %) et des taux de capture des noyaux lourds formant les chaînes de créations des quatre noyaux susmentionnés (produisant une incertitude de 12 % sur la concentration de ces noyaux).

L'obtention de l'incertitude sur la contribution des aciers est délicate. Elle provient de l'estimation du taux de capture neutronique sur le  $^{59}\text{Co}$  dont la réaction est due en majeure partie à des neutrons de faible énergie (~ 130 eV) qui sont négligeables pour le bilan neutronique du réacteur. L'incertitude de 100 % provient d'analyses d'échantillons de structures lors d'expériences sur le réacteur RAPSODIE.

## PARTIE I

Domaine de temps de refroidissement	Composante de la puissance résiduelle					Combinaison quadratique des cinq composantes pondérée par leur contribution
	1 Produits de fission C.f.e (somme)	2 U9 et Np 9	3 $\alpha$ des noyaux lourds	4 Structures acier	5 Na 24 et Na 22	
0	$\pm 14,7 \%$ (17,2 %)	$\pm 7,3 \%$	$\pm 13 \%$	$\pm 100 \%$	$\pm 12,9 \%$	$\pm 13,5 \%$
1 jour	$\pm 10 \%$ (17,2 %)	$\pm 6,0 \%$	$\pm 13 \%$	$\pm 100 \%$	$\pm 12,9 \%$	$\pm 7 \%$
1 mois	$\pm 10 \%$ (17,2 %)	contribution nulle	$\pm 13 \%$	$\pm 100 \%$	contribution nulle	$\pm 10 \%$
6 mois	$\pm 10 \%$ (17,2 %)	"	$\pm 13 \%$	$\pm 100 \%$	"	$\pm 11,7 \%$
1 an	$\pm 17,9 \%$ (15,8 %)	"	$\pm 13 \%$	$\pm 100 \%$	"	$\pm 13,5 \%$
6 ans	$\pm 17,9 \%$ (15,8 %)	"	$\pm 13 \%$	$\pm 100 \%$	"	$\pm 14,6 \%$

Tab. I.2 : Estimation de l'incertitude de la puissance résiduelle et de celle de ses composantes au cours du temps de refroidissement (communication interne).

Temps de refroidissement	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
0 s $\rightarrow$ 100 s	10	10	0,5	Non référéncée	14,2
100 s $\rightarrow$ 1 an	5	7	3		9,2
1 an $\rightarrow$ 6 ans	10	10	10		17,4

Tab. I.3 : Incertitude en pourcentage sur la puissance résiduelle dans le cas d'un calcul avec les CFE (communication interne).

Pour les REP, il est admis que la puissance résiduelle à la chute des barres est égale à 6 %. Il y a néanmoins deux différences majeures sur les courbes de puissance résiduelles des REP par rapport à celles des RNR.

Premièrement, l'effet de capture des neutrons par les produits de fission est bien plus important dans un REP. En effet, le spectre neutronique d'un REP est beaucoup plus bas en énergie (un neutron thermalisé dont l'énergie est de 0,025 eV est moins énergétique et moins rapide qu'un noyau tout juste issu de la fission (2 MeV)), or les sections d'absorption ont une forme en «  $1/v$  » (voir **figure I.8**) c'est-à-dire que plus l'énergie du neutron incident est grande, plus la section d'absorption est petite. Donc la capture des neutrons est favorisée dans les REP. Cela augmente la valeur de la puissance résiduelle d'au moins 10 % pour un temps de refroidissement de  $10^8$  secondes (3 ans) alors qu'il n'est que de 3 % dans un RNR (voir **figure I.9**).

## PARTIE I

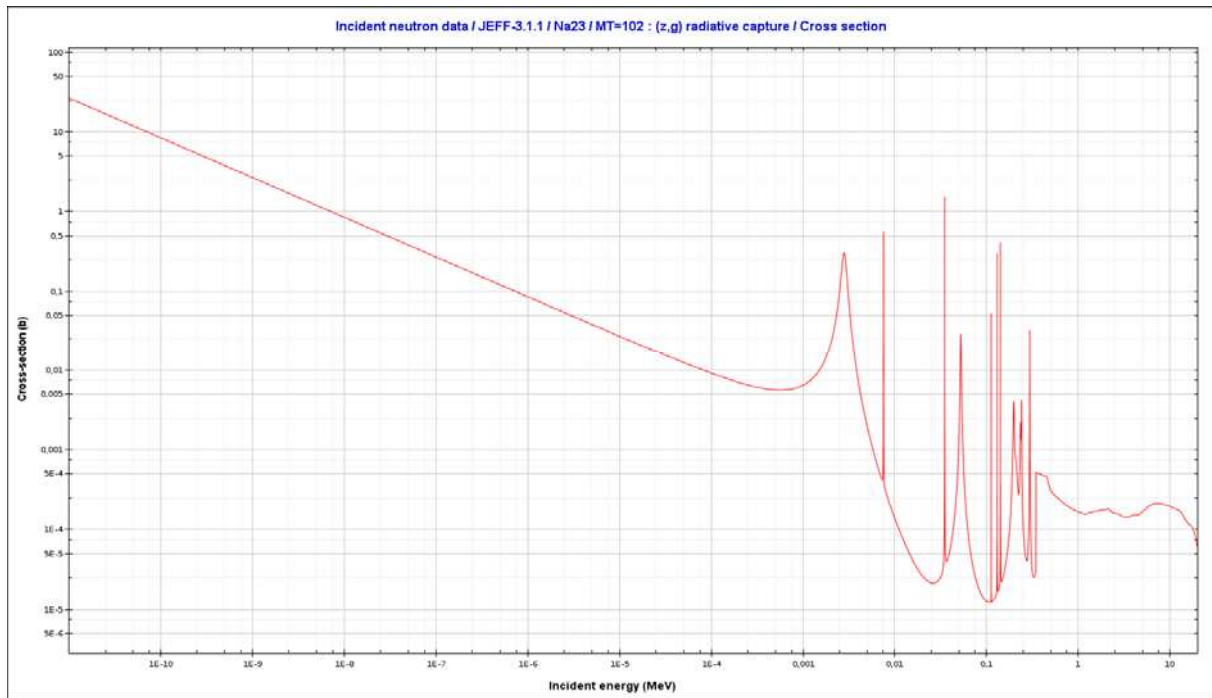


Fig. I.8 : Section de capture du sodium illustrant l'augmentation de la section efficace à basse énergie (donnée JEFF3.1.1).

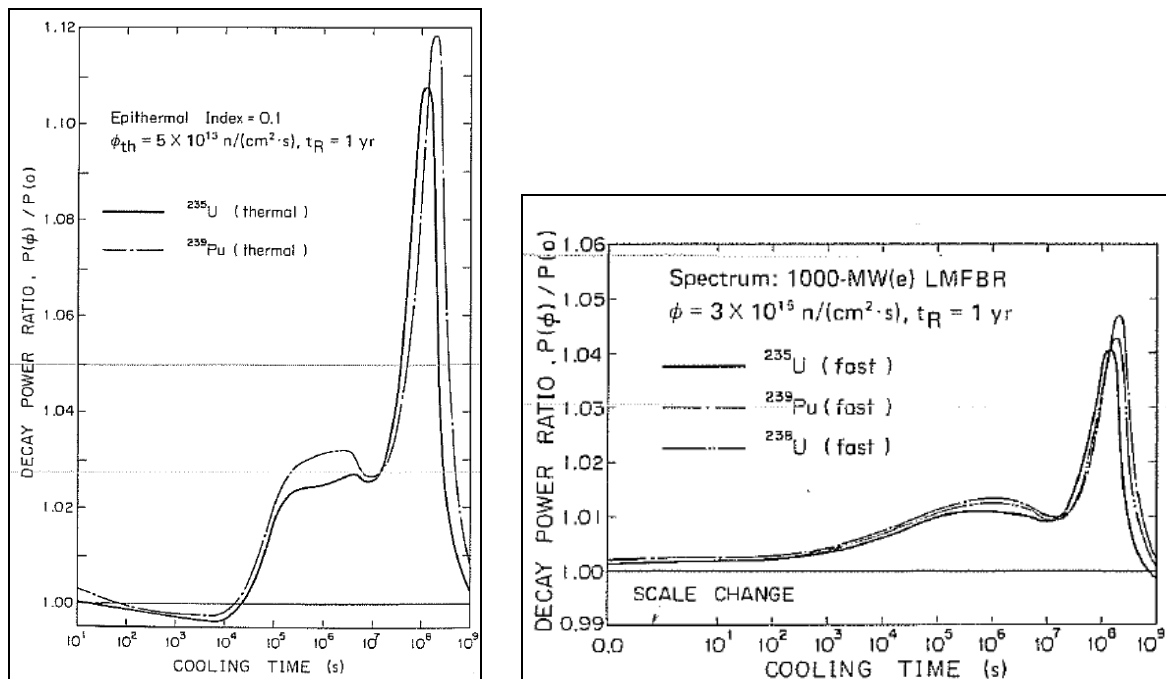


Fig. I.9 : Comparaison de l'effet de capture dans un REP et dans un RNR [44].

Deuxièmement, la puissance résiduelle due aux fissions résiduelles est plus grande comme il a été décrit au début de la partie I. Cependant, cet effet est très bref (inférieur aux 100 premières secondes de refroidissement).

Les valeurs de l'incertitude de la puissance résiduelle (hors fission résiduelle car non évaluée) utilisées dans les REP (UOX et MOX) par EDF proviennent : pour les produits de fission de la méthodologie mise en place dans la thèse de REBAH [45] qui consiste à propager les incertitudes des données nucléaires, pour la contribution de l' $^{239}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Np}$  des recommandations de TOBIAS [27], et pour les actinides mineurs autres que l' $^{239}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Np}$  d'une méthodologie mise en place au CEA basée sur des comparaisons calcul/expérience d'analyses isotopiques de crayons irradiés.

Pour les produits de fission, les données nucléaires dont les incertitudes sont propagées sont : les rendements de fission, et les périodes et énergies de décroissance. Afin d'être conservatif, et parce que certaines incertitudes (sections efficaces, niveau de flux) ne sont pas propagées, les rendements entre eux, les périodes entre elles et les énergies entre elles sont supposées complètement corrélées. La valeur de l'incertitude de cette composante ne varie plus avec la combustion massique si celle-ci est supérieure à 11 000 MW.j/t [45].

L'incertitude de la composante  $^{239}\text{U}$  et  $^{239}\text{Np}$  est de 6 % d'après les valeurs d'incertitude de l'énergie de décroissance de ces noyaux dans la bibliothèque CEA86 basée sur la bibliothèque ENSDF et de l'incertitude estimée sur la formation du  $^{239}\text{Pu}$  par APOLLO1 (code de transport neutronique adapté aux schémas REP) et CEA86.

L'incertitude sur les transuraniens provient de l'écart calcul/ mesure entre APOLLO1+CEA86 et des expériences d'analyses isotopiques de crayons de combustibles irradiés dans la centrale BUGEY3. Les noyaux considérés sont les  $^{238,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242,244}\text{Cm}$  car ils représentent plus de 95 % de la puissance résiduelle pour les temps de refroidissement étudiés. Les incertitudes conservées pour cette composante proviennent du cas le plus pénalisant : un assemblage MOX de combustion massique 50 000 MW.j/t.

Les incertitudes des différentes composantes sont regroupées dans le **tableau I.4**. La **figure I.10** présente l'incertitude de la somme de ces composantes. La somme est réalisée de deux façons : somme quadratique car les composantes sont non-corrélées entre elles, ou somme directe en supposant que toutes les composantes sont corrélées ce qui n'est pas justifié mais permet d'être conservatif.

## PARTIE I

temps de refroidissement		produits de fission $\sigma_1$	$U^{239}$ $Np^{239}$ $\sigma_2$	actinides $\sigma_3$
0.1 s	10 s	7.9%	6%	25%
10 s	100 s	7.2%	6%	25%
100 s	$10^3$ s	6%	6%	25%
$10^3$ s	$10^4$ s	4%	6%	25%
$10^4$ s	$10^5$ s	3%	6%	25%
$10^5$ s	3 mois	2.5%	6%	25%
3 mois	1 an	2.5%		20%
1 an	1.5 an	2.5%		15%
1.5 an	2 ans	2.5%		12.5%
2 ans	3 ans	2.5%		10%
3 ans	10 ans	2.5%		6%
10 ans	100 ans	2.5%		8%
100 ans	200 ans	2.5%		10%

Tab. I.4 : Incertitudes des différentes composantes de la puissance résiduelle dans les REP (communication interne).

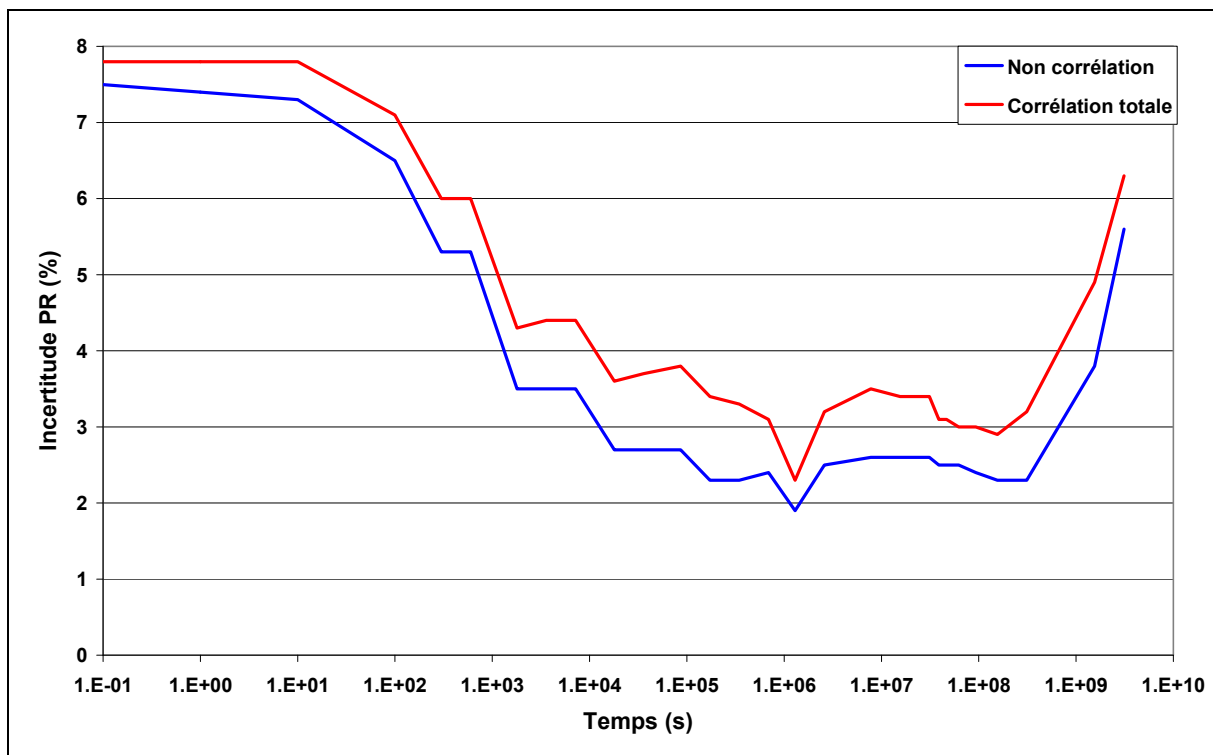


Fig. I.10 : Valeurs de l'incertitude de la puissance résiduelle dans un REP UOX ou MOX.

La courbe des incertitudes de la puissance résiduelle est inférieure à 8 % dans un REP pendant la gamme de temps de 0,1 secondes à 100 ans pour les deux méthodes proposées. La forme des courbes diminue au cours du refroidissement jusqu'à  $10^6$  secondes (11 jours). La raison est que la composante majoritaire pendant cette gamme de temps est la composante « produits de fission » et que l'incertitude de celle-ci diminue avec le temps de refroidissement. Par la suite, la composante majoritaire devient la composante « actinide », en conséquence, l'incertitude augmente.

Il y a très peu de différence entre les deux méthodes de calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle car quel que soit le temps de refroidissement, il n'y a toujours qu'une composante ultra majoritaire. L'incertitude totale de la puissance résiduelle est donc donnée par cette composante.

EDF multiplie par deux ce résultat afin de calculer l'incertitude de la puissance résiduelle à deux écarts-types.



## II – Le formulaire dédié aux calculs d'évolution au CEA : DARWIN

DARWIN (Développement appliqué aux Recyclages Vérifié et Validé pour les Installations Nucléaires) est le formulaire d'évolution du CEA depuis 1993 [46]. C'est l'outil de référence dédié aux études portant sur l'ensemble du cycle du combustible toutes filières considérées. Il répond aux besoins du CEA et de ses partenaires industriels en termes de caractérisation des combustibles et des déchets. Il est développé par le CEA (avec un cofinancement EDF) et sa qualification est cofinancée par le CEA, EDF et AREVA-NC. La version courante est la 2.3.1.

Ce formulaire est dédié aux calculs de concentrations des noyaux intervenant dans un réacteur nucléaire, que ce soit dans le combustible, dans les gaines ou dans les structures et que ce soit en irradiation ou en refroidissement. Il calcule les concentrations en résolvant les équations d'évolution (Eq. 1). A partir des résultats sur les concentrations, il peut en déduire l'activité, la puissance résiduelle, le débit de dose, les sources et spectres  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  et neutrons et la radiotoxicité.

La résolution des équations différentielles se fait par défaut avec une méthode numérique Runge-Kutta d'ordre 4. Cependant, il est possible de demander à ce que les équations soient résolues de façon analytique moyennant certains arrondis de calculs dans le cas de boucles.

### A – Schéma de fonctionnement du formulaire DARWIN

La **figure I.11** présente les différents composants du formulaire DARWIN. DARWIN est composé d'un module de calcul neutronique, du solveur PEPIN pour les calculs d'évolution, de bibliothèques de données nucléaires (JEFF3.1.1, JEF2.2, ENDF, JENDL) et de plusieurs modules permettant de coupler les différents solveurs. De plus, il est composé d'un module INVERSION permettant de connaître les voies de formation des noyaux a posteriori.

De la bibliothèque JEFF3.1.1 sont tirées 4 bibliothèques. Une bibliothèque contient les chaînes de filiation permettant de lier les noyaux entre eux suivant leurs sections efficaces et leurs données de décroissance. Une autre contient les valeurs des sections efficaces

multigroupes. Une contient les données nucléaires. Enfin, la dernière contient les facteurs de conversion de débit de dose.

Il existe trois voies possibles pour un calcul DARWIN : la voie REP, la voie Activation (utilisée notamment en RNR) et la voie Décroissance. Suivant la voie choisie, le module de calcul neutronique ainsi que les bibliothèques de sections efficaces multigroupes changent. Dans le cas de la voie RNR, le module de calcul neutronique utilise le formulaire ERANOS et la bibliothèque de sections efficaces à 33 groupes.

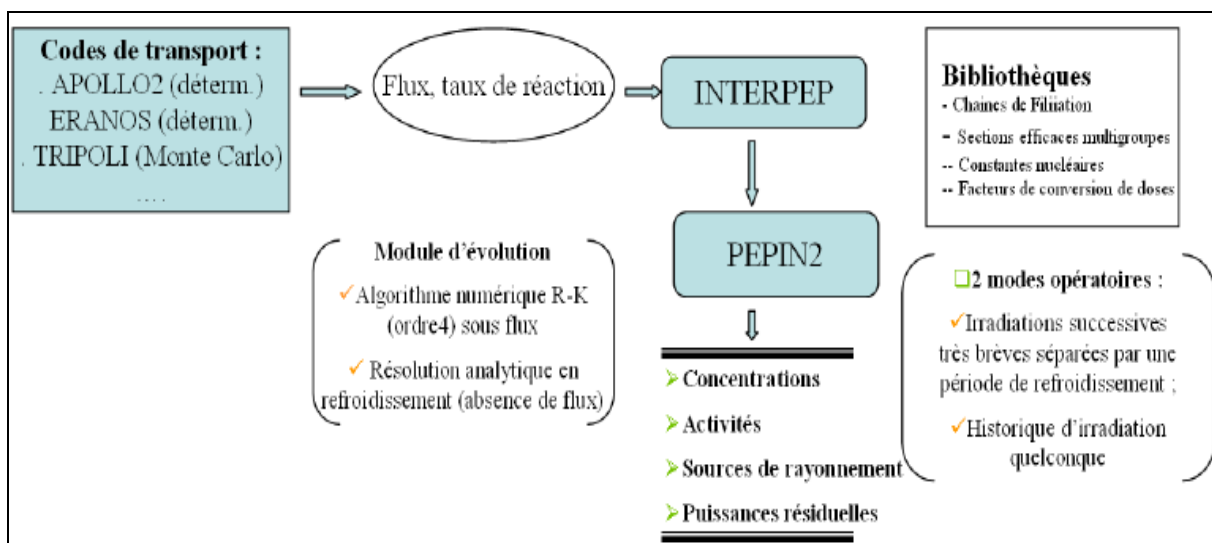


Fig. I.11 : Présentation du formulaire DARWIN (communication interne).

## B – Schéma de fonctionnement du formulaire ERANOS

ERANOS (European fast Reactor neutronic ANalysis Optimised System) est un formulaire de calcul développé au CEA dans le cadre d'un projet européen. Il permet de calculer les caractéristiques neutroniques des réacteurs à neutrons rapides en résolvant les équations de transport ou de diffusion de façon déterministe. Ces caractéristiques neutroniques sont : le flux neutronique, les sections efficaces autoprotégées et la réactivité. De plus, il a la possibilité de réaliser des calculs de sensibilité grâce à un module de perturbation permettant de calculer un flux adjoint. Enfin, il peut réaliser des calculs d'évolution simplifiés ce qui lui permet de calculer finement les caractéristiques neutroniques tout le long d'un palier d'irradiation.

L'organisation du formulaire ERANOS et de ses principales fonctions sont présentées sur la **figure I.12**. La première étape consiste à réaliser un calcul cellule afin d'obtenir des sections efficaces autoprotégées. Le code ECCO est le solveur dédié à ces calculs. Il réalise les calculs pour chacun des milieux définis traités de façon infinie. Les géométries du réacteur peuvent être finement représentées puisqu'il peut traiter des assemblages hexagonaux hétérogènes avec un découpage énergétique à 1968 groupes. Il a la possibilité de condenser les sections à 33 groupes et d'homogénéiser les assemblages de façon à être utilisées pour les calculs cœur. Les calculs cœurs sont réalisés par les solveurs BISTRO ou VARIANT suivant la méthode de calcul utilisée. La donnée d'entrée est la géométrie du cœur et les sections efficaces autoprotégées provenant d'ECCO et représentant les différents milieux du cœur. Le résultat du calcul cœur est le flux et le spectre neutronique pour chacune des parties du cœur réacteur.

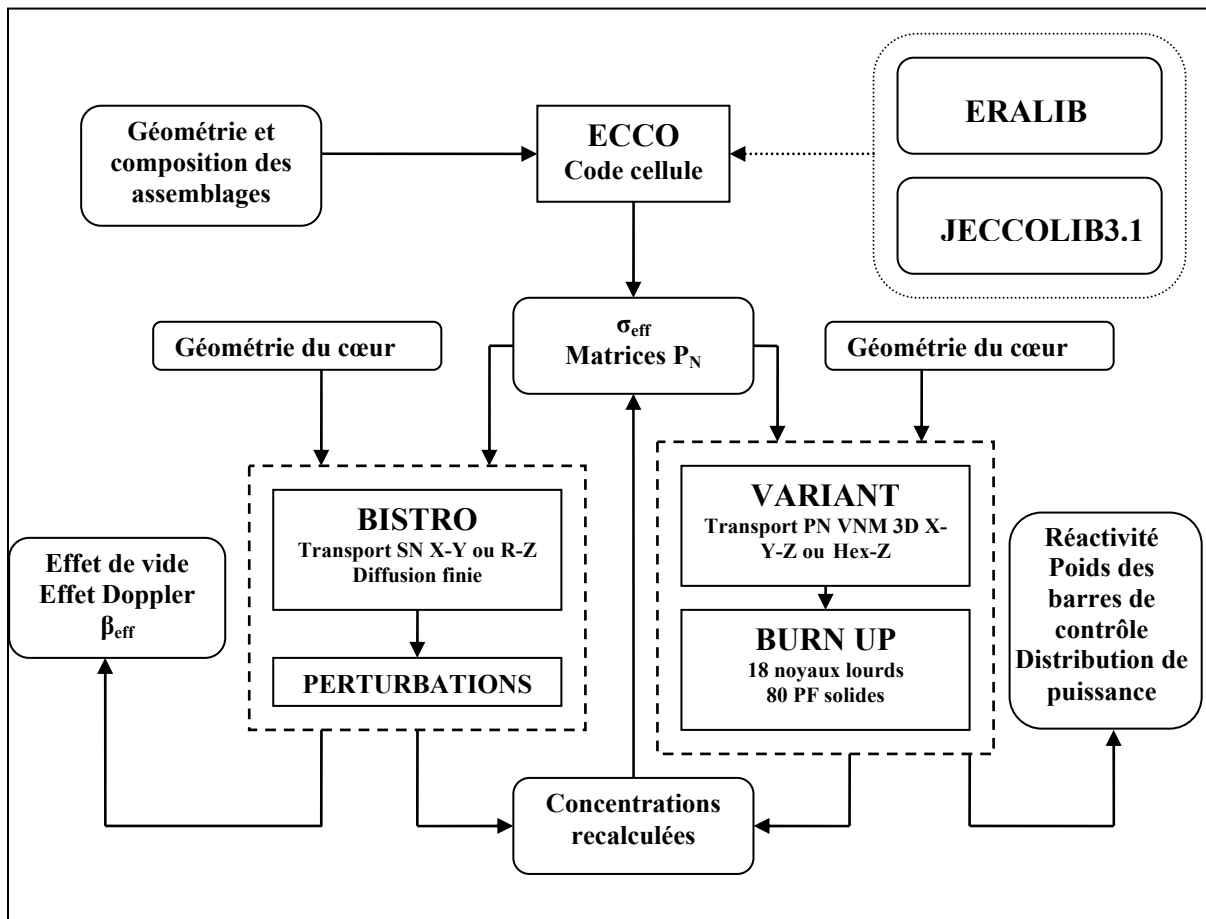


Fig. I.12 : Présentation du formulaire ERANOS (communication interne).

## C – Méthodologie de validation des codes de calcul

Il est important de s'assurer de la bonne modélisation des effets physique par le code de calcul. Pour cela, la politique du CEA est d'obtenir la certification V&V [47][48] pour ses codes. La méthode V&V est nommée ainsi pour Vérification et Validation numérique et expérimentale. Cette certification permet d'affirmer que le code :

- Modélise correctement l'effet physique étudié,
- Permet un retour d'analyse sur les données nucléaires utilisées lors d'une comparaison calcul/expérience,
- Valide une utilisation du code pour obtenir des résultats à caractère prédictif, certifiant à l'utilisateur que les biais de calcul sur les paramètres intégraux sont inférieurs aux incertitudes de la cible.

L'étape de vérification doit montrer que la résolution numérique des modèles neutroniques et la programmation des modules sont correctes et que, de plus, le calcul est au moins aussi bien réalisé qu'avec la précédente version du code.

La validation numérique consiste à quantifier la précision du modèle déterministe utilisé par rapport à un modèle stochastique.

La validation expérimentale consiste à comparer les résultats du code de calcul aux résultats expérimentaux issus d'expériences intégrales. Cette validation est d'autant mieux réalisée si une méthode de propagation des incertitudes et d'analyse de sensibilité est mise en place.

Le paragraphe IV de cette partie I décrit la validation expérimentale du formulaire DARWIN.

### **III – Description du fonctionnement d’un réacteur à neutrons rapides : la centrale PHENIX**

La centrale PHENIX, basée sur le centre CEA de Marcoule, est un réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium d’une puissance de 563 MWth, réduite à 350 MWth en 1993. Il a fonctionné de 1974 – date de raccordement au réseau électrique national – jusqu’en 2009. C’est l’un des trois réacteurs à neutrons rapides français avec RAPSODIE (40 MWth) et SUPER-PHENIX (3 000 MWth) eux aussi arrêtés.

#### **A – Avantages et inconvénients des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium**

Le but d’un réacteur à neutrons rapides est d’avoir une population de neutrons beaucoup plus importante que dans les réacteurs à neutrons thermiques. Cette population est utilisée pour fissionner le combustible –  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{238}\text{U}$  – mais aussi pour convertir l’ $^{238}\text{U}$  en  $^{239}\text{Pu}$  et transmuter les actinides mineurs.

La conversion de l’ $^{238}\text{U}$  en  $^{239}\text{Pu}$  permet d’utiliser une grande part de l’uranium – l’ $^{238}\text{U}$  est l’isotope de l’uranium le plus présent naturellement avec 99,3 % de la masse totale de l’uranium pur – qui ne peut l’être dans les réacteurs à neutrons thermiques dans le but de créer de la matière fissile. Ceci permet de mettre en place des cycles iso-générateurs voire surgénérateurs, ce qui signifie créer autant voire plus de combustible que ce qui a été utilisé.

Les actinides mineurs sont les déchets à vie longue des réacteurs nucléaires. Les réacteurs à neutrons rapides pourraient permettre de transmuter une grande partie de ces déchets, ce qui induit une quantité moindre de déchets à stocker. Le terme transmutation regroupe deux effets : la fission et la capture radiative. La fission permet de produire de l’énergie en détruisant le déchet. La capture permet de réduire le temps de stockage des déchets mais elle induit une augmentation de la chaleur à évacuer car elle produit des déchets à vie plus courte mais forcément plus actifs.

Le caloporteur utilisé dans les réacteurs à neutrons rapides français est le sodium liquide. Celui-ci a l’avantage par rapport au plomb notamment, d’avoir un point de fusion assez bas :

## PARTIE I

97,8°C, tout en ayant un point d'ébullition suffisamment haut : 883°C. De plus, il a l'avantage, par rapport au gaz (hélium) d'avoir une chaleur massique et une conduction thermique importantes. Outre ses capacités thermiques, il est aussi transparent aux neutrons ce qui permet de conserver un flux de neutrons de haute énergie.

Par contre, le sodium possède deux inconvénients. Tout d'abord il est opaque ce qui rend difficile les observations de la cuve du réacteur ou des tuyauteries à la différence du gaz ou de l'eau. Ensuite, il réagit violemment avec l'eau et brûle au contact de l'oxygène. Ceci entraîne de lourdes précautions concernant sa manipulation et l'étanchéité des circuits.

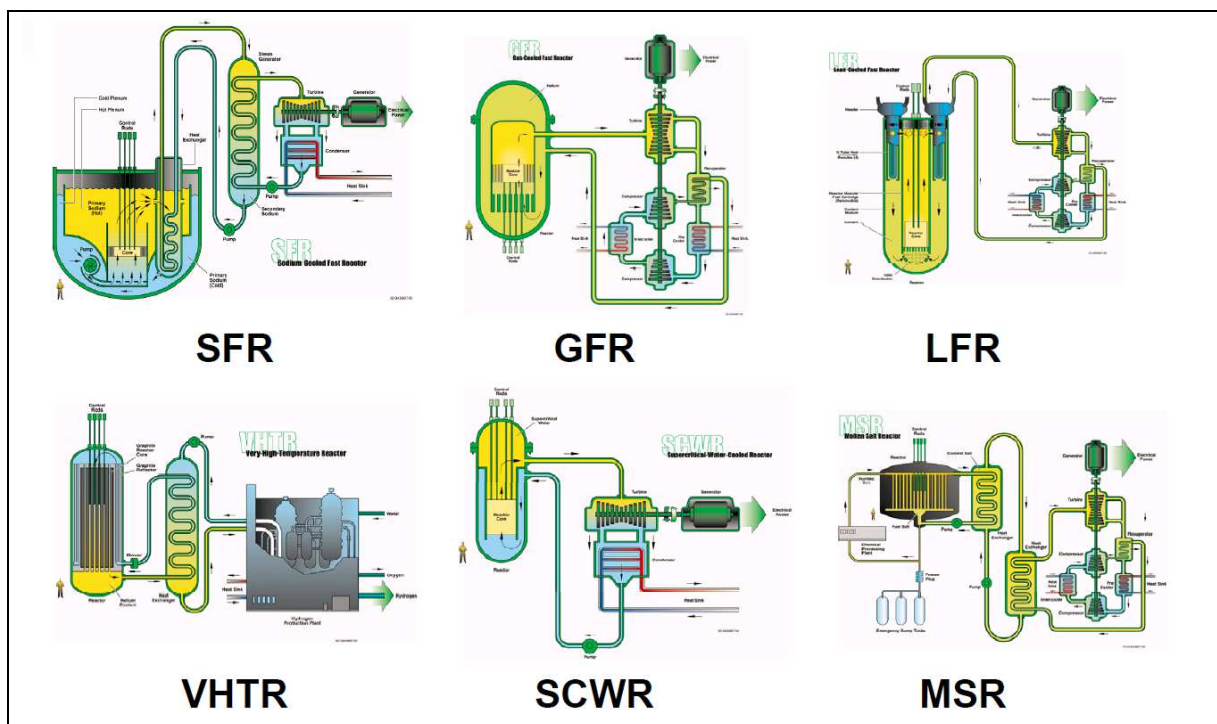


Fig. I.13 : Représentation schématique des 6 concepts faisant partie du forum GenIV (source internet).

Finalement, les avantages du RNR (durabilité (pouvoir multirecycler le plutonium et utiliser le mieux possible la ressource en uranium, avoir la capacité de réaliser la transmutation de certains actinides mineurs) , sûreté, économie, et résistance à la prolifération) ont conduit la France à retenir le RNR Sodium comme filière de référence pour répondre aux attentes vis-à-vis d'un système de 4<sup>ème</sup> génération parmi les différents concepts de réacteur de 4<sup>ème</sup> génération étudiés dans le cadre du forum Gen-IV (SFR Sodium-cooled Fast Reactor, GFR Gas-cooled Fast Reactor, LFR Lead-cooled Fast Reactor, VHTR Very High Temperature

Reactor, SCWR Super Critical Water-cooled Reactor, MSR Molten Salt Reactor) (voir **figure I.13**).

Néanmoins, le CEA conserve une activité de recherche sur le RNR Gaz dans le cadre d'une collaboration européenne dont l'objectif est, à terme, de construire dans un autre pays un réacteur expérimental de petite taille : ALLEGRO.

## **B – Description de la centrale PHENIX**

### **1) Description générale de la centrale**

La **figure I.14** ci-dessous présente le fonctionnement de la centrale PHENIX [49]. La centrale est composée des trois bâtiments habituels des centrales nucléaires : le bâtiment réacteur, le bâtiment des générateurs de vapeur et le bâtiment des installations de production d'électricité.

Le bâtiment réacteur contient une cuve de type piscine. Ce type de cuve, beaucoup plus large que les cuves des REP, présente la particularité de pouvoir intégrer outre le cœur du réacteur, les pompes primaires et les échangeurs intermédiaires. Ce système permet de s'assurer que le sodium primaire reste contenu dans la cuve. Par contre, la quantité de sodium nécessaire est plus importante : 800 tonnes. L'usinage de la cuve est plus complexe du point de vue de la taille, mais celle-ci ne doit pas supporter les énormes pressions des REP. Afin de s'assurer de l'intégrité de la cuve, celle-ci est doublée : une cuve intérieure et une cuve extérieure.

L'échangeur intermédiaire est une pièce supplémentaire qui n'existe pas dans les REP. Cet échangeur permet de refroidir le circuit primaire par un circuit secondaire lui aussi en sodium. Ainsi, en cas de fuite au sein de l'échangeur intermédiaire, il y a une interaction sodium-sodium plutôt que sodium-eau. Il y a donc aussi un circuit supplémentaire dans ce concept de RNR.

Le bâtiment des générateurs de vapeur permet la transmission de la chaleur du circuit sodium vers le circuit eau-vapeur. L'expérience du fonctionnement de PHENIX a montré que des fuites sodium-eau peuvent avoir lieu (32 pendant le fonctionnement de PHENIX), mais que celles-ci peuvent être détectées et qu'il est possible d'y faire face.



Enfin, le bâtiment des installations de production d'électricité fonctionnent de la même manière que dans les REP.

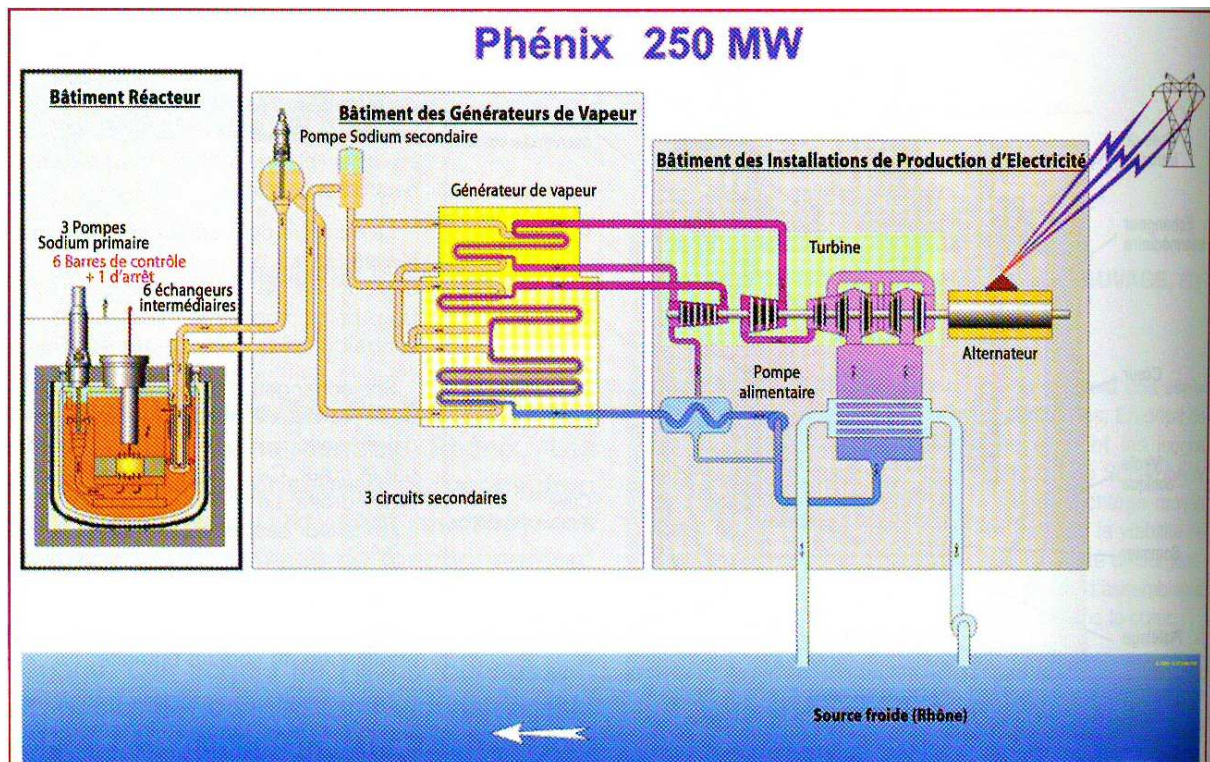


Fig. I.14 : Schéma de fonctionnement de la centrale PHÉNIX (communication interne).

## 2) Description du cœur du réacteur PHÉNIX

Le cœur des réacteurs à neutrons rapides français, et du réacteur PHÉNIX, est composé d'assemblages hexagonaux dont la structure est réalisée en acier inoxydable.

La **figure I.17** présente le cœur du réacteur PHÉNIX. La partie centrale du cœur de PHÉNIX, d'un diamètre de 1,50 mètre, est composée d'assemblages contenant du combustible fissile. Il y a deux zones radiales appelées interne et externe qui diffèrent par leur composition et leur enrichissement en plutonium. La somme des assemblages de ces deux zones est d'environ une centaine d'assemblages. Ces assemblages sont composés de trois zones axiales appelées couverture axiale inférieure, zone fissile et couverture axiale supérieure (voir **figure I.15**). La zone fissile, d'une hauteur de 85 centimètres et la couverture axiale inférieure sont composées de 217 aiguilles dont la structure est en acier inoxydable et dans lesquelles sont placées les



## PARTIE I

pastilles de combustibles fissile et fertile. La couverture axiale supérieure d'un assemblage est composée de 90 aiguilles de diamètre plus large que les aiguilles précédentes.

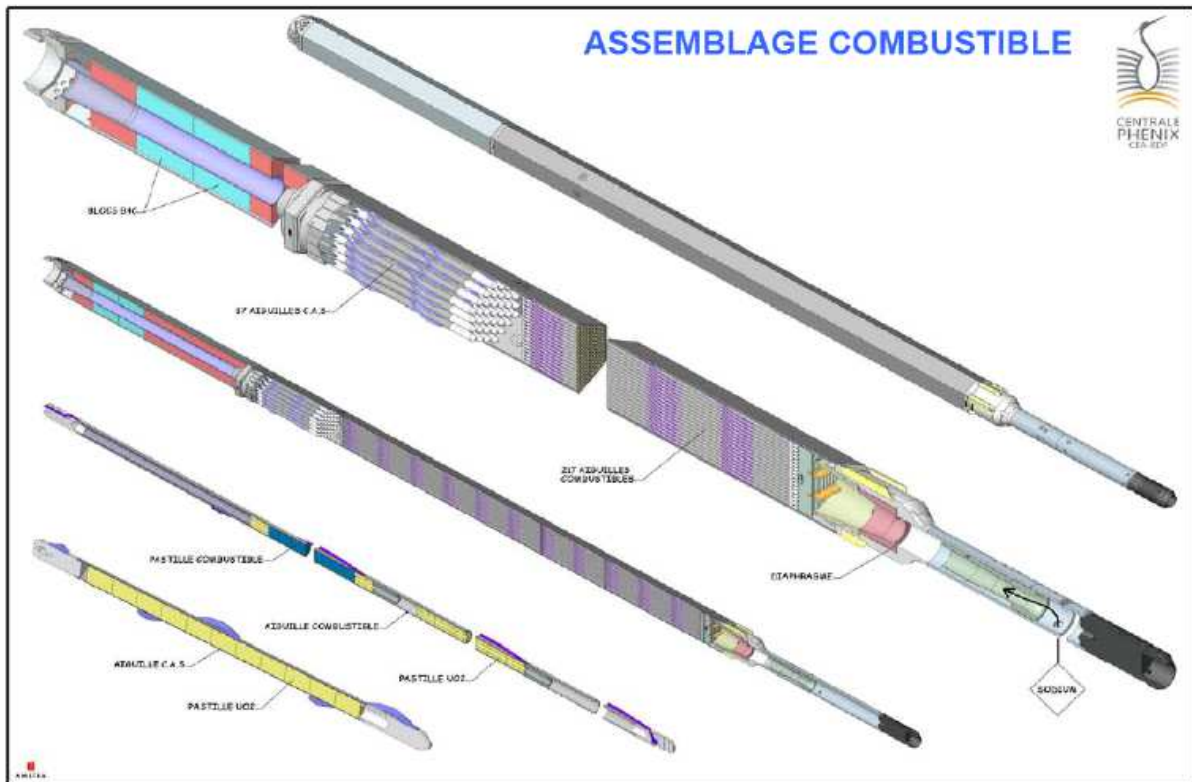


Fig. I.15 : Représentation schématique d'un assemblage fissile et d'une aiguille fissile (communication interne).

La zone fissile est entourée par deux couronnes d'assemblages composées d'un combustible fertile (voir **figure I.16**) dont le but, identique aux couvertures axiales, est de convertir l'uranium en plutonium et de réduire le flux neutronique.

Autour de ces couronnes se trouvent plusieurs couronnes d'assemblages hexagonaux en acier et de rondins constitués d'acier, de graphite ou de graphite boré dont le but est de diminuer le flux neutronique afin d'éviter d'activer le sodium du circuit secondaire et de protéger les composants se trouvant dans la cuve.

Enfin, le cœur de PHENIX contient une partie appelée stockage interne. Cette partie possède plusieurs emplacements qui sont soit laissés vide, soit comblés par des assemblages fissiles en attente. Dans le cas d'une fissure d'une gaine d'un assemblage fissile du cœur, l'assemblage défaillant peut être remplacé immédiatement par un assemblage situé en stockage interne et

## PARTIE I

sans avoir à passer un assemblage par le barillet. Ceci permet d'arrêter le réacteur pour une durée moins longue que si l'assemblage était retiré de la cuve.

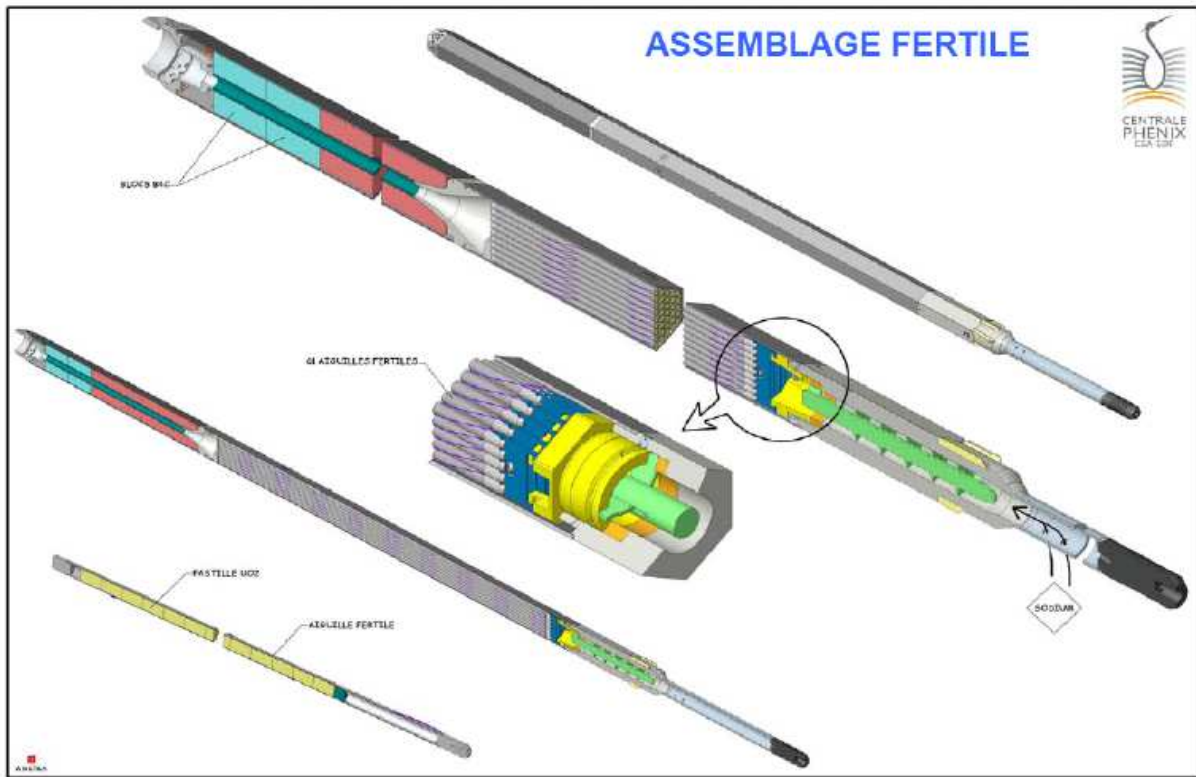


Fig. I.16 : Représentation schématique d'un assemblage fertile et d'une aiguille fertile (communication interne).

Composition (%)	Ass. Fissile Cœur Interne	Ass. Fissile Cœur Externe	Ass. Fertile
<b>Enrichissement Pu (%)</b>	22,96	28,67	-
$^{235}\text{U}$	0,26	0,23	0,31
$^{238}\text{U}$	76,59	70,87	99,69
$^{238}\text{Pu}$	0,06	0,07	-
$^{239}\text{Pu}$	16,13	20,12	-
$^{240}\text{Pu}$	5,89	7,34	-
$^{241}\text{Pu}$	0,66	0,85	-
$^{242}\text{Pu}$	0,22	0,28	-
$^{241}\text{Am}$	0,19	0,24	-

Tab. I.5 : Composition des assemblages du cœur du réacteur PHENIX (communication interne).

La composition des assemblages du cœur du réacteur PHENIX est résumée dans le **tableau I.5**. Les assemblages fissiles possèdent un enrichissement en plutonium de 23 % (assemblage interne) et 28,7 % (assemblage externe). Le reste du combustible est composé d'uranium appauvri. Les assemblages fertiles sont eux aussi constitués d'uranium appauvri.

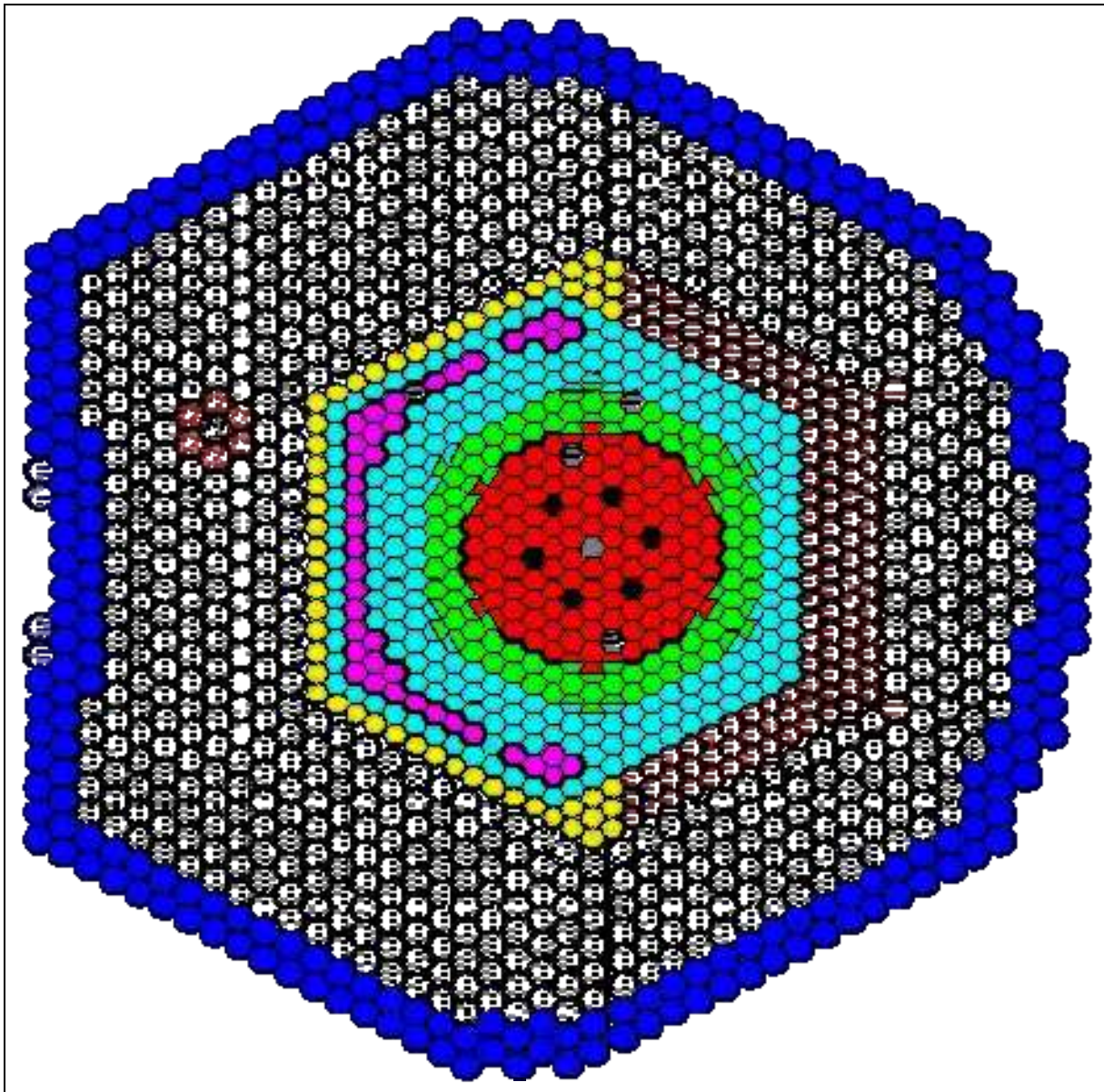


Fig. I.17 : Description du cœur de la centrale PHENIX. (rouge : assemblages fissiles, vert : assemblages fertiles, bleu clair : assemblages acier, jaune blanc et bleu : rondins d'acier, violet : stockage interne) (communication interne)

## IV – Les expériences de validation expérimentale du formulaire DARWIN

Plusieurs expériences peuvent être réalisées pour valider expérimentalement le formulaire DARWIN. Le premier type d'expériences est basé sur le résultat de base de DARWIN : la concentration des noyaux (bilan matière). Les autres types d'expériences tirent partie du fait qu'à partir de la concentration, plusieurs grandeurs sont accessibles : l'activité, la puissance résiduelle et le débit de dose en particulier.

Concernant les réacteurs à eau légère et les REP en particulier, le dossier de validation expérimentale est très important [50]. Outre des expériences de puissance résiduelle (courbe de fission élémentaire [14] ou calorimétrie sur un assemblage [51]), de nombreuses analyses isotopiques ont permis de valider le calcul du bilan matière pour : les principaux actinides (U, Pu, Np, Am, Cm) et les produits de fission majeurs impliqués notamment dans le crédit burn-up ( $^{143,145}\text{Nd}$ ,  $^{147,149,150,151,152}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ), dans le calcul de la puissance résiduelle ( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ) ou pour tracer le taux de combustion (isotopes du Néodyme).

Concernant les réacteurs à neutrons rapides, le dossier de qualification est moins étendu de part le retour d'expérience plus restreint. Il contient trois principales expériences de validation du bilan matière sur combustibles fissiles ou fertiles : TRAPU [52], PROFIL [53][54], DOUBLON [55] et des expériences de puissance résiduelle pour des échantillons [33] et en réacteur [56].

### A – L'expérience de bilan matière TRAPU

L'expérience TRAPU (TRAnsmutation de Plutonium(PU)) est une expérience destinée à : valider les codes d'évolution pour la formation des actinides secondaires de la filière rapide, valider les bibliothèques de données nucléaires, et déterminer le gain de régénération (Rapport de la quantité de  $^{239}\text{Pu}$  produite sur la quantité de  $^{239}\text{Pu}$  fissionnée ou transmutée).

## PARTIE I

Cette expérience a été réalisée entre 1977 et 1979 dans le réacteur PHENIX. Elle est constituée de 10 aiguilles fissiles de trois compositions différentes, réparties dans deux assemblages situés dans le cœur interne de Phénix (voir **tableau I.6**). Le reste des aiguilles de ces assemblages sont des aiguilles standard fissiles.

Type	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	$\text{PuO}_2/(\text{U,Pu})\text{O}_2$ (% en masse)
TRAPU-1 (Pu UNGG)	0.12	73.26	21.92	3.99	0.71	19.60
TRAPU-2 (Pu H2O)	0.77	71.37	18.54	7.42	1.90	19.25
TRAPU-3 (Pu chargé en $^{240}\text{Pu}$ )	0.22	33.97	49.40	10.03	6.38	28.04

Tab. I.6 : Description des ventilations en plutonium des différentes concentrations.  
(communication interne)

3 compositions d'assemblages sont testées : une correspond à l'isotopie du plutonium provenant d'un assemblage usé de type UNGG (Uranium Naturel Graphite Gaz : génération 1), une correspond à l'isotopie du plutonium provenant d'un assemblage usé de type MOX et une est chargée en  $^{240}\text{Pu}$ . La teneur en plutonium est ajustée de façon à ce que l'aiguille fournisse autant de puissance qu'une aiguille standard. L'uranium utilisé pour la fabrication de l'oxyde mixte est de l'uranium naturel. Sur les 10 aiguilles expérimentales, 2 sont de type 1, 4 de type 2 et 4 de type 3.

L'irradiation a eu lieu du 31/1/77 au 19/3/79, soit 6 cycles (du 10<sup>ème</sup> au 15<sup>ème</sup>) pour un total de 364.5 JEPP (jours équivalent pleine puissance). Les assemblages ont refroidi en cœur jusqu'au 1/7/79. L'historique d'irradiation est présenté dans le **tableau I.7**. Il prend en compte la décroissance entre le moment de fabrication de l'assemblage et celui de son introduction dans le cœur du réacteur.

Pour chacune des aiguilles expérimentales, deux échantillons d'environ 10 mm situés à 20 mm sous le plan médian ont été prélevés – là où le flux est maximum. Ceux-ci sont dissous (combustible + gaine) et expédiés à différents laboratoires d'analyse du CEA. La composition isotopique s'obtient par spectrométrie de masse. Certains rapports sont obtenus par spectrométrie alpha ou gamma (Voir le **tableau I.8**). Des échantillons vierges venant des mêmes lots de pastilles irradiées ont aussi été analysés afin d'avoir un ensemble cohérent de mesures réalisées à la même période avec le même matériel expérimental.



## PARTIE I

Dates et durées calendaires	Nature	Nombre de jepp
31/01/1977 → 19/06/1977 (139 jours)	Attente	0
19/06/1977 → 22/08/1977 (65 jours)	Cycle 10	42.8
22/08/1977 → 04/12/1977 (105 jours)	Refroidissement	0
04/12/1977 → 07/03/1978 (94 jours)	Cycle 11	65.0
07/03/1978 → 19/04/1978 (44 jours)	Refroidissement	0
19/04/1978 → 29/06/1978 (72 jours)	Cycle 12	62.8
29/06/1978 → 11/07/1978 (13 jours)	Refroidissement	0
11/07/1978 → 20/09/1978 (72 jours)	Cycle 13	61.8
20/09/1978 → 28/10/1978 (39 jours)	Refroidissement	0
28/10/1978 → 06/01/1979 (71 jours)	Cycle 14	66.1
06/01/1979 → 13/01/1979 (8 jours)	Refroidissement	0
13/01/1979 → 19/03/1979 (66 jours)	Cycle 15	66.0
19/03/1979 → 01/07/1979 (104 jours)	Refroidissement	0

Tab. I.7 : Historique d'irradiation pour les cycles 10 à 15. (communication interne)

Technique mise en œuvre	Noyaux analysés
Spectrométrie de masse (avec ou sans dilution isotopique)	Isotopes de l'uranium, plutonium, néodyme, américium et curium. Isotopes du césium, lithium et bore.
Spectrométrie alpha	Ratios : $^{244}\text{Cm}/^{239}\text{Pu}$ , $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ , isotopes du curium
Spectrométrie gamma	Produits de fission et d'activation de la gaine

Tab. I.8 : Techniques utilisées pour les différentes analyses. (communication interne)

Les analyses ont été réalisées entre les mois de mai 1980 et mai 1981. Elles sont néanmoins ramenées au 1<sup>er</sup> juillet 1979 à l'aide des données de décroissance de l'époque afin d'avoir la même date d'analyse pour toutes et de pouvoir simplifier les comparaisons.

Les noyaux lourds analysés sont les suivants :  $^{234,235,236,238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ ,  $^{241,242\text{m},243}\text{Am}$ ,  $^{242,243,244}\text{Cm}$ . En plus de ceux-ci sont analysés les isotopes du néodyme ( $^{143,144,145,146,148,150}\text{Nd}$ ) afin de permettre un recalage du taux de fission utilisé pour le calcul.

L'interprétation de cette expérience est réalisée dans la partie IV paragraphe II.

## B – Les expériences de puissance résiduelle

Plusieurs types d'essai de puissance résiduelle sont possibles. Le premier est l'analyse de la puissance d'un échantillon (pastille) pur ( $> 90 \%$ ). La deuxième est l'analyse d'un crayon ou d'un assemblage combustible (crayon du cœur FORTISSIMO sur RAPSODIE (1973) [57], MERCI sur OSIRIS (2008 – REP) [51]). Enfin, la dernière est l'analyse de la puissance délivrée par le réacteur dans sa globalité. Les expériences PUIREX font partie de la dernière catégorie.

Ce genre d'expérience n'est pas accessible aux réacteurs à eau légère car ce qui la rend possible est l'inertie thermique du sodium dans la configuration piscine de la cuve adoptée dans la centrale PHENIX. Cette inertie empêche la température du sodium d'augmenter trop rapidement.

### 1) Historique des essais de puissance résiduelle sur les RNR français

Plusieurs essais de type PUIREX ont été réalisés durant la vie des réacteurs PHENIX et SUPER-PHENIX : 4 sur PHENIX (1979, 1982, 1993, 2008) et 2 sur SUPERPHENIX (1987, 1996). Le **tableau I.9** résume les temps de refroidissement étudiés, les écarts observés entre le calcul et l'expérience ainsi que leurs incertitudes à un écart-type associées, les codes de calcul et bibliothèques de données nucléaires utilisées pour le calcul et la date de l'interprétation de l'expérience par le calcul.

Première remarque : les essais, autres que l'essai réalisé sur PHENIX en 2008, ont tous des durées de refroidissement très courtes (inférieures à 3 jours). Quasiment tous les essais ont été interprétés avec le formulaire MECCYCO – JEF1. Il semblerait d'ailleurs que le « code développé pour SPX » soit bien le code MECCYCO. Seul le code utilisé pour l'interprétation de l'essai de 1982 sur PHENIX n'est pas connu, mais il est fort probable que ce soit aussi MECCYCO.

Une forte tendance est que le calcul surestime la puissance résiduelle sur les essais réalisés dans PHENIX et la sous-estime sur les essais réalisés dans SUPERPHENIX. L'origine de cette tendance n'est toujours pas claire. Il peut s'agir d'un problème de modélisation

## PARTIE I

numérique ou d'un problème de modélisation des termes d'apports et de fuites d'un des deux réacteurs. Pour l'essai de 1982 dans PHENIX, l'interprétation de 1983 ne tient compte ni de l'énergie dégagée par le sodium et par les aciers, ni de l'énergie  $\alpha$  dégagée par les noyaux lourds, ni de l'énergie libérée par l' $^{239}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Np}$ . Or les deux premiers points sont estimés à 4 % de la puissance résiduelle totale et les deux derniers et plus particulièrement le dernier, sont estimés à 22 % de la puissance résiduelle totale dans l'essai de 1993. En conséquence, si ces composantes sont ajoutées au calcul, l'écart calcul – expérience devient positif et vaut 23 %.

Les incertitudes de calcul de la puissance résiduelle proviennent d'une adaptation des incertitudes de chaque composante présentées plus haut. L'obtention des incertitudes expérimentales sont présentées ci-dessous.

Essais	Temps Refroidissement	Ecart C/E-1 (%)	Incertitudes E (1 $\sigma$ - %) C (1 $\sigma$ - %)	Code Bibliothèque	Date interprétation
<b>PHENIX 1979</b>	7 à 35 heures	+6 à +18	4,5 à 5 3	Code développé pour SPX	1979
		+6 à +20	8,9 à 9,8 13,5 à 7	MECCYCO JEF1	1992
<b>PHENIX 1982</b>	6 à 34 heures	- 8,5 à - 9	4 ?	?	1983
<b>PHENIX 1993</b>	6 à 72 heures	+5 à +17	10 8	MECCYCO JEF1	1993
<b>PHENIX 2008</b>	1 heure 30 à 12 jours	+8 à - 8	5 à 11 5	DARWIN JEFF3.1.1	2010
<b>SPX 1987</b>	3 à 24 heures	- 9 à - 5	2,4 à 6,5 5,4 à 3,9	MECCYCO JEF1	1988
		- 15 à - 10	6,7 à 12,5 4,8 à 3,8	MECCYCO JEF1	1998
<b>SPX 1996</b>	3 à 52 heures	+3 à - 2	3,8 à 6,8 4,6 à 3,5	MECCYCO JEF1	2002

Tab. I.9 : Historique des essais de puissance résiduelle PUIREX et comparaison calcul-expérience (C/E). (en jaune : l'essai interprété dans le cadre de cette thèse)



## 2) Procédure d'analyse des essais de puissance résiduelle PUIREX

La valeur de la puissance résiduelle dans les réacteurs refroidis au sodium peut être obtenue en mesurant la température du sodium primaire puis en résolvant une équation de bilan énergétique. Dans ce cas, la puissance résiduelle est égale à l'inertie thermique des composants du cœur (assemblages, sodium, structures, graphite, fertile) multipliée par la variation temporelle de température du sodium primaire à quoi l'on ajoute les apports (pompes primaires et secondaires) et pertes (rayonnement et conduction dans les différents circuits de refroidissement) de puissance.

$$PR = I(\theta) \frac{d\theta}{dt} - \sum \text{Apports} + \sum \text{Pertes}$$

Avec :

PR : puissance résiduelle,

$I(\theta)$  : Inertie du réacteur dépendant de la température du sodium,

$d\theta / dt$  : dérivée de la température du sodium par rapport au temps.

L'inertie thermique se calcule comme la somme des produits des masses des composants par leur chaleur massique :

$$I(\theta) = \sum_i m_i C_{p_i}(\theta)$$

Avec :

$m_i$  : la masse de l'élément  $i$ ,

$C_{p_i}$  : la chaleur massique de l'élément  $i$  à la température  $\theta$  donnée.

Les termes d'apport et de perte de puissance font l'objet d'études préalablement à l'expérience. Ceci permet de modéliser leur évolution en fonction de la température du sodium primaire à l'aide de polynômes. Les températures sont échantillonnées toutes les minutes à l'aide de thermocouples disposés dans des perches et sur les parois de la cuve.

### 3) Différence entre l'essai de 2008 et les essais précédents

Deux protocoles expérimentaux légèrement différents ont été mis en œuvre pour les essais de type PUIREX. Le mode commun à ces deux protocoles consiste, tout d'abord, à effectuer un arrêt rapide du réacteur. La température du sodium primaire, qui en fonctionnement est de 380 °C en entrée du cœur et de 530 °C en sortie cœur, est diminuée entre 250 °C et 350 °C suivant l'expérience. Cette diminution permet des variations de température du sodium nécessaires à l'expérience sans dépasser les niveaux de sécurité (la température du sodium ne doit pas dépasser 450 °C pour un état quasi-isotherme d'arrêt du réacteur d'après le rapport de sûreté de la centrale, la variation temporelle de la température du sodium ne doit pas dépasser 5 °C/5min pour éviter des contraintes trop fortes sur les attentes de la cuve). A ce moment, les circuits ternaires des générateurs de vapeur sont asséchés et les trappes des générateurs de vapeur (permettant un refroidissement par air) sont fermées afin d'obtenir un système le plus adiabatique possible. Le système résultant englobe le circuit primaire et le circuit secondaire. L'expérience peut commencer.

#### a) La méthode des créneaux

La première méthode consiste à laisser augmenter la température du sodium pendant quelques heures, puis de rouvrir les trappes afin de faire baisser la température et de répéter l'opération plusieurs fois. Cette méthode est dite à créneaux. C'est celle qui a été utilisée sur tous les essais sauf sur celui de 2008.

L'avantage de cette méthode est qu'elle ne nécessite pas d'avoir une modélisation très fine des termes d'apport, de perte et de chaleur massique par rapport à la température du sodium car l'étendue de la gamme de température est faible. Une bonne connaissance de ces termes autour de la valeur moyenne de la température du sodium est suffisante. Un autre avantage est d'avoir de grandes variations temporelles de température sur chaque créneau, ce qui diminue l'incertitude associée au terme d'inertie. Cette variation temporelle de la température est de 4°C/h et 1,3°C/h (cf. **figure 1.18**) par rapport à moins de 1°C/h voire moins de 0,5°C/h pour l'essai PUIREX 2008 (cf. **figure I.19**).

L'inconvénient principal est que l'ouverture et la fermeture des trappes induit un fort transitoire et une non-homogénéité de la température du sodium pendant plusieurs heures. Ceci entraîne un biais sur les mesures qu'il est difficile d'estimer.

Un autre inconvénient est la perte de chaleur entraînée par l'ouverture des trappes. Celle-ci, répétée plusieurs fois, ne permet d'effectuer que quelques créneaux et donc une étude uniquement sur quelques heures de refroidissement (72 heures maximum).

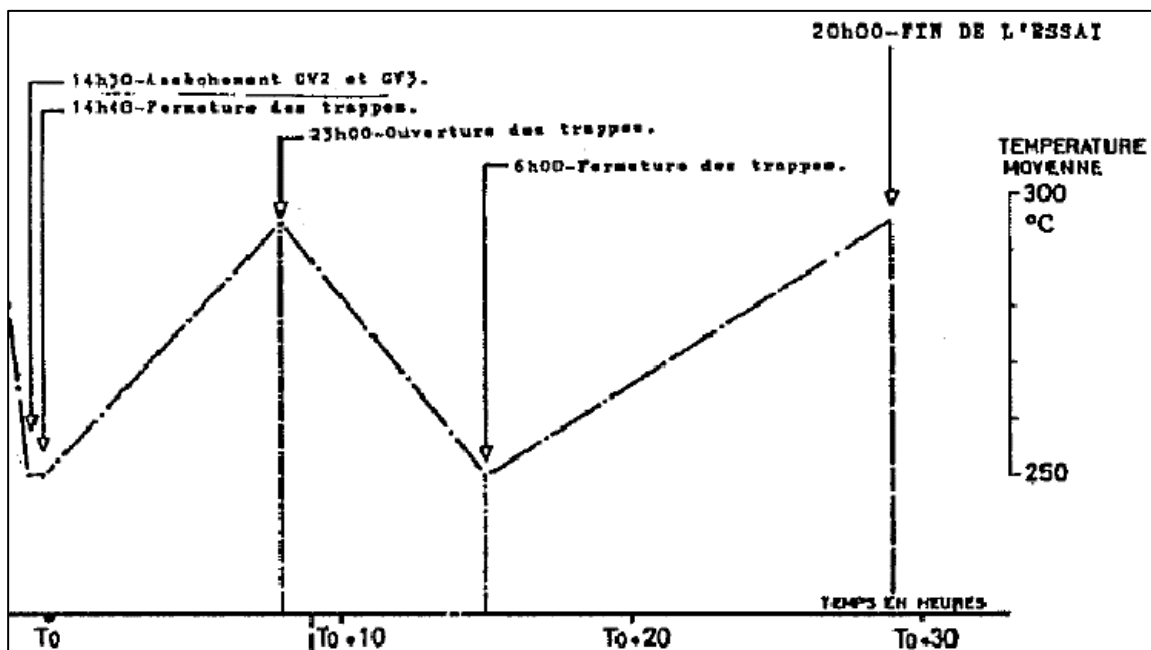


Fig. I.18 : Courbe de température du sodium primaire pour une méthode en créneaux. (communication interne)

#### b) La méthode sans contrainte sur la température

Pour l'essai de 2008, la méthode retenue a été de ne pas agir sur la température du sodium et donc de ne pas ouvrir les trappes. Le but de cette méthode est de s'affranchir des possibles effets transitoires inhérents à la méthode des créneaux. La conséquence est une évolution libre de la température du sodium du réacteur (voir figure I.19). Ceci implique de prévoir finement l'évolution de celle-ci et le comportement du réacteur avant l'essai afin de ne pas dépasser de seuil de sécurité (température du sodium inférieure à 450 °C). Seules des interventions mineures ont été nécessaires afin de faire durer l'essai le plus longtemps possible.

Les interventions sont répertoriées ci-dessous :

## PARTIE I

- 1026 min après la chute des barres de contrôle : réduction de la vitesse des pompes sodium secondaires de 110 tr/min à 100 tr/min.
- 2812 min après la chute des barres de contrôle : réduction de la vitesse des pompes sodium primaires de 300 tr/min à 110 tr/min. Ceci entraîne une augmentation de la température du sodium dans le collecteur chaud car le sodium reste plus longtemps dans le cœur du réacteur et emmagasine plus de chaleur due à la puissance résiduelle. En contrepartie, la température du sodium dans le collecteur froid diminue car le sodium reste plus longtemps dans l'échangeur intermédiaire où il échange sa chaleur avec le circuit secondaire.
- 7216 min après la chute des barres de contrôle : vidange d'une boucle de sodium secondaire. Le but est de diviser par deux les pertes de chaleur afin de faire durer l'expérience plus longtemps. Pendant quelques heures, les apports de chaleur redeviennent plus important que les pertes ce qui entraîne une augmentation de la température du sodium primaire.

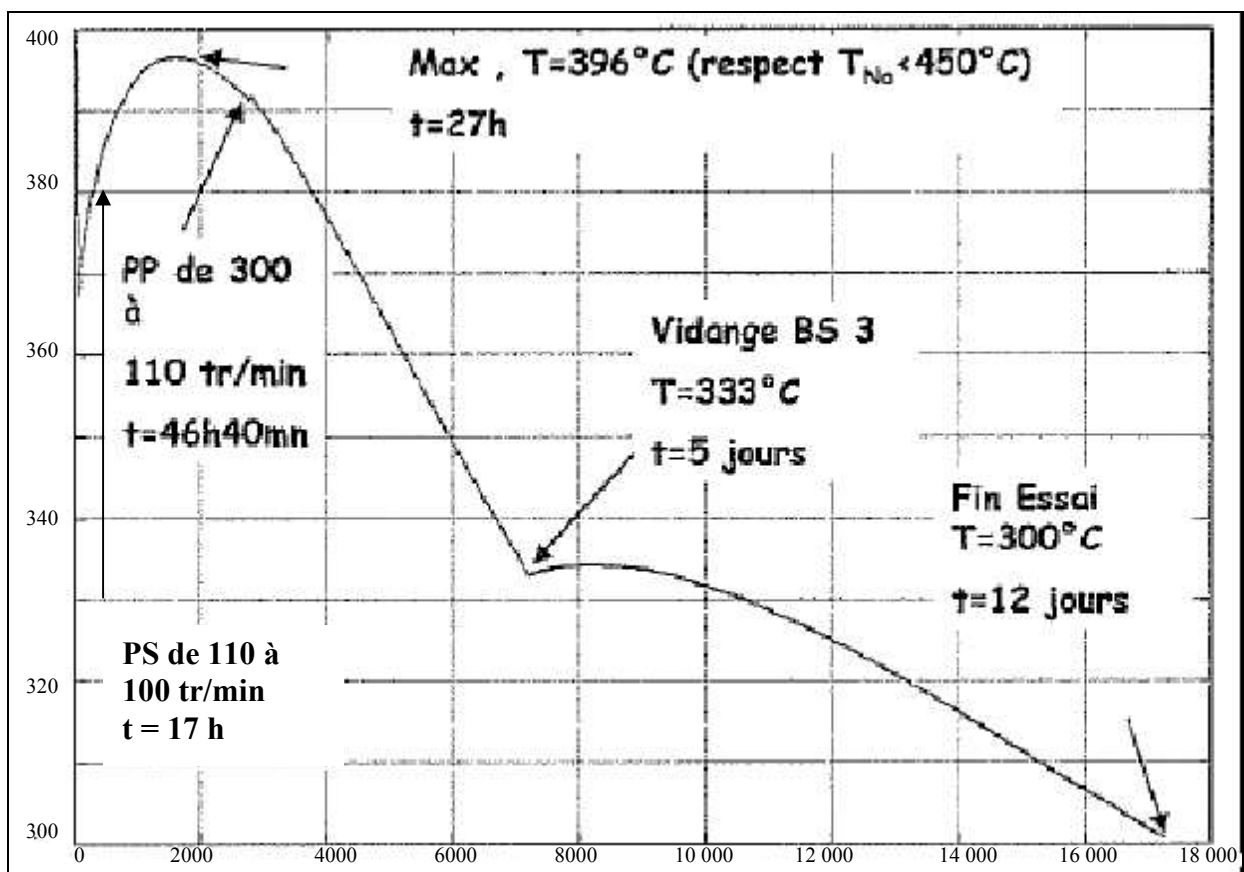


Fig. I.19 : Courbe de la température du sodium primaire (°C) en fonction du temps de refroidissement (min) lors de l'essai PUIREX de 2008 dans PHENIX. (PP : Pompe circuit Primaire, PS : Pompe circuit Secondaire, BS : Boucle Secondaire) (communication interne)

## PARTIE I

L'avantage de ce protocole est de ne pas créer de transitoire par des ouvertures et fermetures de trappes de ventilation au niveau des générateurs de vapeur, et donc d'éviter de créer des inhomogénéités dans la température du sodium aux différents endroits du circuit. Les seuls transitoires existants se trouvent : au début de l'essai dû à la nécessité de baisser fortement la température du sodium, et à 5 jours de refroidissement lors de la vidange du générateur de vapeur. En conséquence, les points de mesure juste après ces manipulations peuvent être biaisés.

L'inconvénient est d'avoir des termes de fuite et d'inertie qui varient avec la température et qu'il faut alors soigneusement évaluer.

Un autre problème, évoqué plus haut, est que la variation temporelle de température est particulièrement faible (voir **figure I.20**) ce qui entraîne une augmentation de l'impact de l'incertitude du terme d'apport de l'inertie sur l'incertitude de la puissance résiduelle.

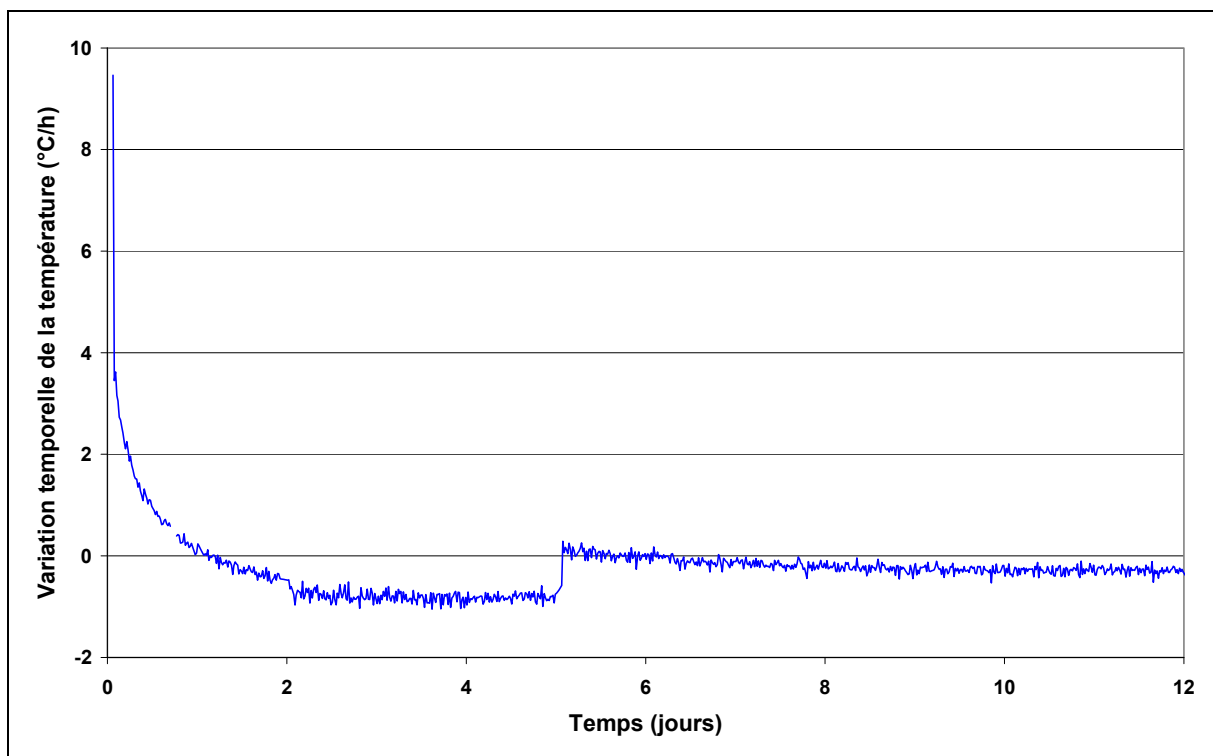


Fig. I.20 : Evolution de la variation temporelle de température pendant l'essai PUIREX 2008.

#### 4) Résultats expérimentaux de l'essai PUIREX 2008

Le résultat de l'évaluation expérimentale de la puissance résiduelle dans l'essai PUIREX de 2008 est présenté sur la **figure I.21**.

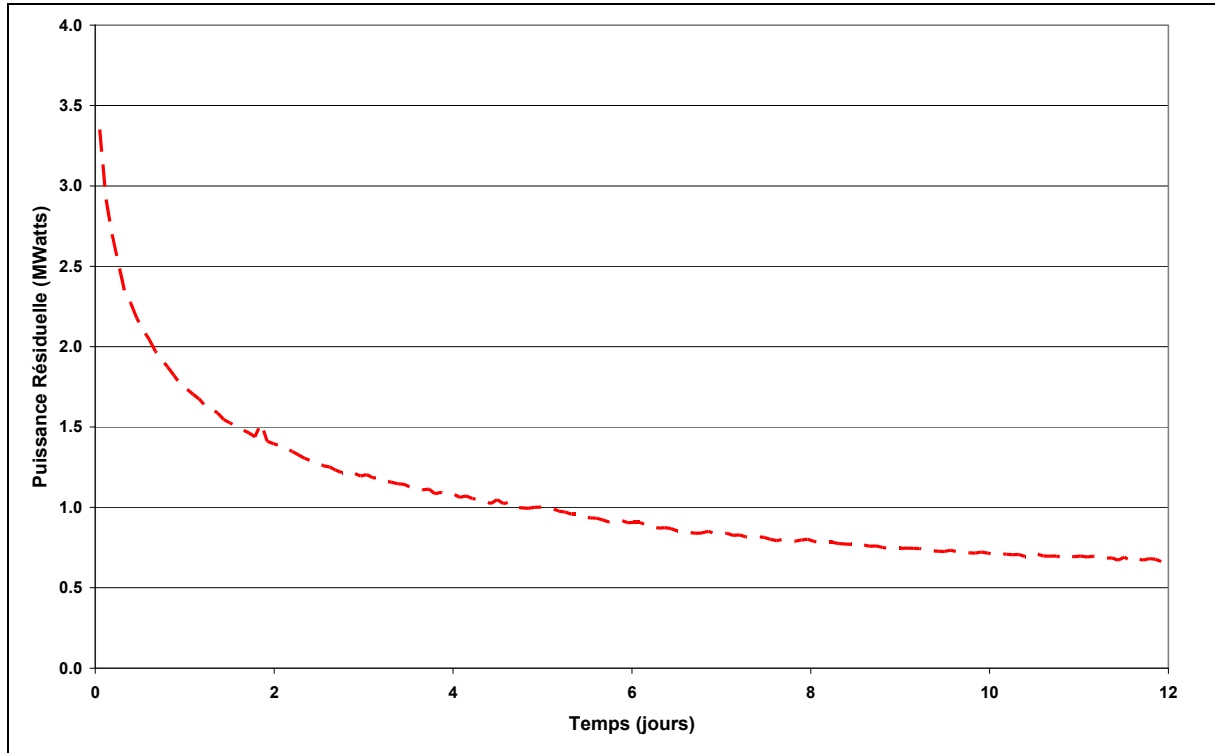


Fig. I.21 : Estimation de la valeur de la puissance résiduelle pendant l'essai PUIREX de 2008.

Le calcul de la sensibilité de la puissance résiduelle aux termes apparaissant dans l'équation de bilan énergétique présentée au paragraphe IV.B.2 (l'apport des pompes primaires et secondaires, le produit de l'inertie thermique du système et de la variation temporelle de la température du sodium, et les pertes dans les circuits primaires et secondaires) permet d'apprécier l'impact de chacun de ces termes sur cette courbe. La **figure I.22** présente ces sensibilités.

Cette figure établit clairement que l'apport des pompes primaires et secondaires est très faible. A l'inverse, les termes de fuite sont extrêmement importants. Ceci était prévisible car la courbe de variation de la température du sodium à l'intérieur du cœur pendant les 12 jours de refroidissement décroît du deuxième au douzième jour, ce qui signifie que les termes de pertes de chaleur sont plus importants que les termes d'apport de chaleur. Enfin, même si le gradient de température est faible, la sensibilité de la puissance résiduelle au produit du gradient de

## PARTIE I

température du sodium et de l'inertie reste importante à cause de la masse énorme qu'est le réacteur (plus de 1 000 tonnes de sodium, et 1 000 tonnes d'acier).

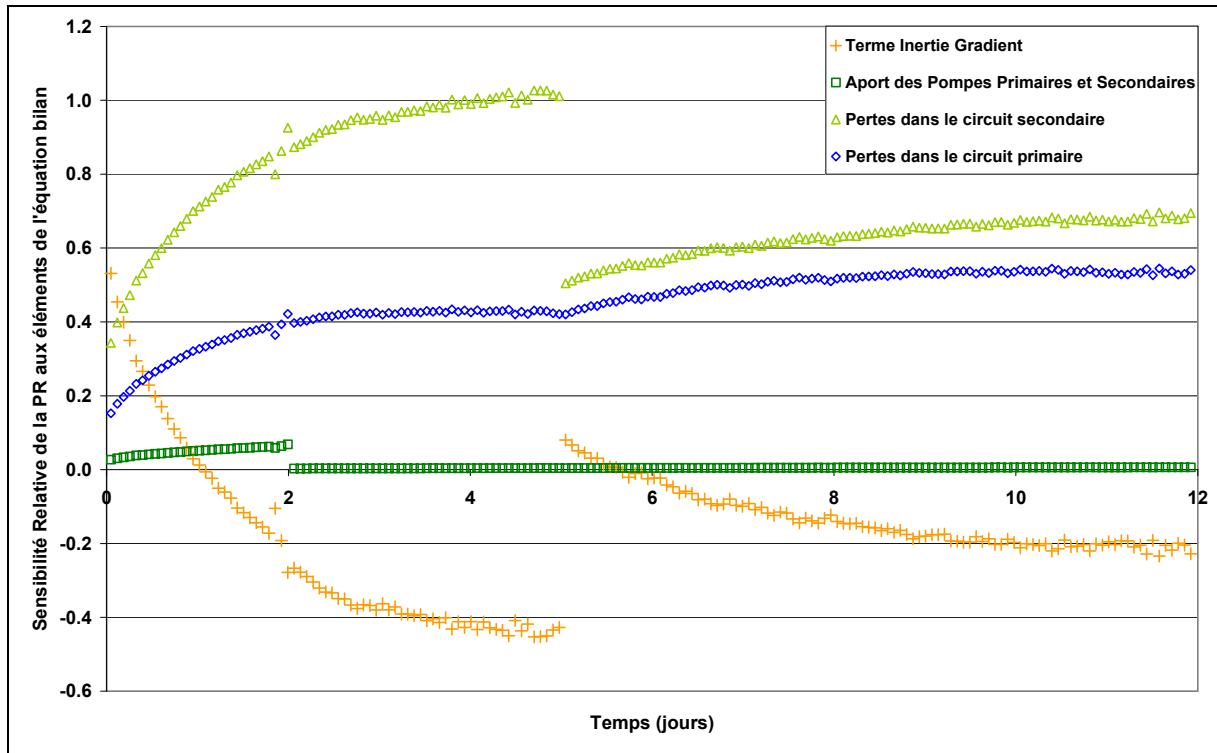


Fig. I.22 : Sensibilité relative de la puissance résiduelle expérimentale aux termes apparaissant dans l'équation de bilan énergétique.

L'analyse de l'incertitude expérimentale de cet essai a fait l'objet d'une publication en conférence [58]. Pour chacun des termes, l'incertitude provient d'étalonnages réalisés à la centrale PHENIX. L'incertitude de la chaleur développée par les pompes primaires et secondaires est estimée à 5 %. L'incertitude sur l'inertie thermique des composants du système est estimée à 5 %. La température du sodium est mesurée avec une précision inférieure au degré Celsius. Les termes de fuite étant difficiles à évaluer, leur incertitude est estimée à 10 %.

La propagation de ces incertitudes, grâce aux sensibilités calculées précédemment, permet d'obtenir la **figure I.23** qui présente l'incertitude de la puissance résiduelle expérimentale. Cette incertitude, exprimée à 1 sigma, est évaluée entre 5 et 11 % pendant les 12 jours de l'essai. Elle augmente pendant les 5 premiers jours de refroidissement, puis chute lors de l'assèchement d'une boucle secondaire, et enfin, augmente jusqu'à la fin de l'essai. Elle est cohérente avec l'augmentation de la sensibilité de la puissance résiduelle aux termes de perte

## PARTIE I

de chaleur. Ce sont ces termes de fuite qui contribuent le plus à l'incertitude de la puissance résiduelle ; le terme d'inertie a un impact maximal de 15 % et les pompes ont un impact négligeable.

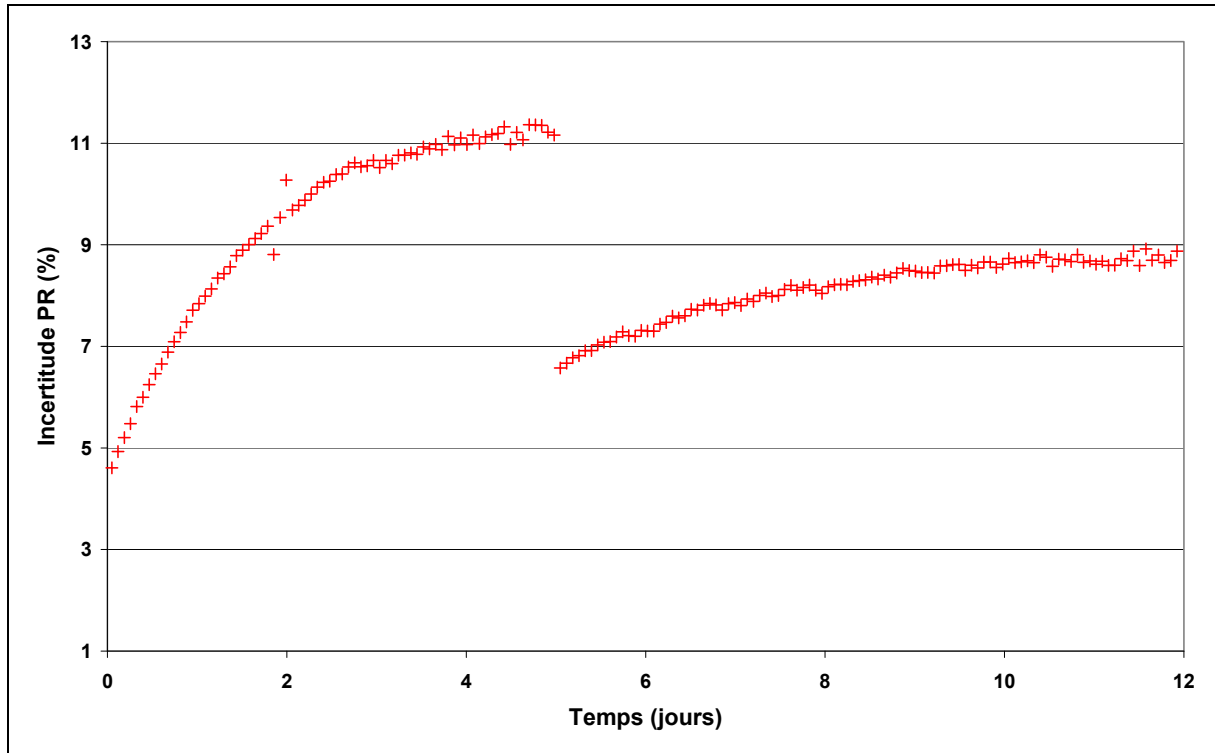


Fig. I.23 : Incertitude de la puissance résiduelle expérimentale de l'essai PUIREX 2008.

L'interprétation numérique de cette expérience est réalisée dans la partie II, chapitre 1 pour la valeur de la puissance résiduelle et dans la partie IV, paragraphe I pour les incertitudes.





## **PARTIE II**

# **DESCRIPTION DE L'ESSAI PUIREX 2008 ET IDENTIFICATION DES DONNEES NUCLEAIRES IMPACTANT LA PUISSANCE RESIDUELLE**

## **Chapitre 1 – Identification et caractérisation des composants du cœur du réacteur PHENIX produisant la chaleur résiduelle dans l'essai PUIREX**

La puissance résiduelle est une chaleur produite par plusieurs sources. Afin de pouvoir l'analyser, il convient d'identifier ses sources au sein du réacteur, puis de les caractériser. Les caractéristiques nécessaires à la modélisation de ces sources sont internes : composition isotopique, masse ; et externes : position dans le réacteur, flux et spectre neutroniques, temps d'irradiation.

Des expériences de puissance résiduelle en réacteurs ont été réalisées sur PHENIX et SUPERPHENIX, ce sont les expériences PUIREX (Voir la partie I). Ces expériences permettent de caractériser la puissance émise par l'ensemble des éléments présents dans la cuve du réacteur pour des temps de refroidissement s'étalant d'une heure et demie à une dizaine de jours. Ainsi, elles sont particulièrement représentatives de la puissance résiduelle émise par des réacteurs à neutrons rapides industriels.

La comparaison de la modélisation d'un essai PUIREX avec l'expérience nous permettra de nous assurer de la justesse de notre modèle et de caractériser les composantes de la puissance résiduelle afin de les analyser plus finement. De plus, elle nous permettra de faire un tri sur les composantes à étudier selon la valeur de leur contribution à la puissance résiduelle.

### **I – Modélisation de l'essai PUIREX de 2008**

L'essai PUIREX 2008 (voir la partie I) fait partie des « essais fin de vie » du réacteur PHENIX [1]. Il a été décidé de modéliser cet essai parmi tous les essais PUIREX réalisés car il a la gamme de temps de refroidissement la plus étendue de tous les essais ce qui est très intéressant pour la validation de notre modèle. De plus, les « essais fin de vie » ayant pour vocation de tenter de répondre à des questions sensibles sur les réacteurs à neutrons rapides, et ces essais étant la dernière occasion de réaliser des expériences sur un réacteur à neutrons rapides en France avant au moins une décennie, une grande liberté a été laissée aux

scientifiques ce qui permet d'avoir un essai très propre avec des incertitudes contrôlées. Enfin, dans le but de caractériser le plus finement possible les sources et fuites de puissance intervenant dans l'équation bilan, celles-ci ont fait l'objet d'études préliminaires à l'essai. Au même titre, les thermocouples ont été recalibrés avant l'essai. Le traitement des incertitudes expérimentales a fait l'objet d'une publication en conférence [2] et est repris dans la partie I.

## A – Création des jeux de données pour le calcul d'évolution

### 1) Description des composants analysés

Modéliser cet essai, revient à modéliser les composants présents dans la cuve au moment de l'essai, et qui ont subi une irradiation capable de les rendre radioactif ce qui les rend contributeurs de la puissance résiduelle. Ont été pris en compte : les assemblages fissiles et fertiles, les assemblages présents en stockage interne, les assemblages en acier et en graphite ainsi que les rondins d'acier servant de protection neutronique latérale et axiale. Les structures modélisées sont le sommier et le faux-sommier car ils sont proches du cœur et possèdent une masse d'acier considérable par rapport aux autres éléments du réacteur. Enfin, la période du  $^{24}\text{Na}$  (principal élément radioactif produit par l'activation du  $^{23}\text{Na}$  (voir la section efficace sur la **figure I.8** :  $\sim 1,71$  millibarn en moyenne en spectre rapide)) étant de 14,96 heures, seule la quantité de sodium présente dans les assemblages du cœur a été modélisée.

Le reste de la cuve n'a pas été pris en compte du fait du très faible ratio du flux périphérique par rapport au flux au centre du cœur : inférieur d'au moins 6 ordres de grandeur (voir **figure II.1**).

Pour la même raison, et parce qu'il n'y a aucune réaction de fission à modéliser, le calcul de la puissance résiduelle provenant des structures et des protections neutroniques latérales va être traité de façon simplifiée par rapport aux assemblages fissiles et fertiles. Un calcul moyen de l'irradiation de celles-ci sera réalisé.

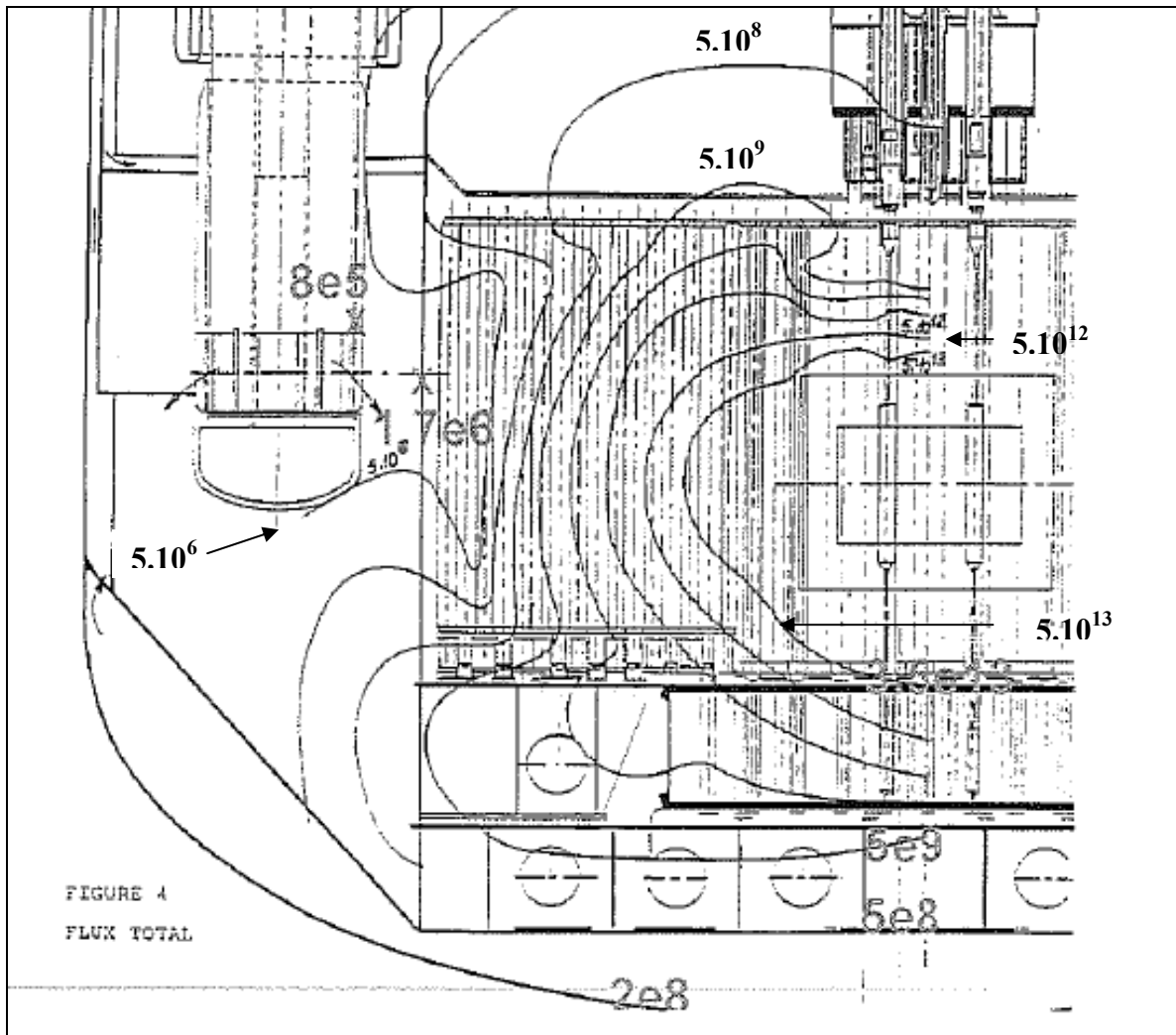


Fig. II.1 : Cartographie du flux calculé dans le cœur PHENIX à l'aide du code ERANOS en  $n/cm^2/s$  (Communication Interne).

## 2) Création des historiques d'irradiation

Il est important de modéliser finement l'historique d'irradiation des assemblages fissiles et fertiles car de cet historique va dépendre la concentration des noyaux pendant l'essai. Or cette concentration varie avec le taux de combustion et avec le niveau de flux. Ces deux données, ainsi que les temps de refroidissement inter-paliers vont être les données importantes de cette étude.

Les historiques d'irradiation mis en place pour le calcul PEPIN de DARWIN se basent sur les données provenant de la centrale PHENIX, et dont il est possible d'obtenir une illustration dans le livre de SAUVAGE [3]. Ceux-ci sont simplifiés afin de diminuer le temps de calcul.

L'important est de modéliser correctement le niveau de flux juste avant l'expérience afin de décrire la concentration des produits de fission à vie courte, et de modéliser correctement le taux de combustion de chaque assemblage afin de décrire la concentration des noyaux à vie plus longue. L'historique de la puissance du réacteur est modélisé de la façon suivante suivant trois périodes de temps (voir **figure II.2**) :

- Modélisation précise des durées d'irradiation et durées de refroidissement interpaliers après le 4/10/2006 (juste avant l'expérience). Un ou deux niveaux de flux moyen par palier.
- Modélisation moins précise des durées d'irradiation et de refroidissement du 15/07/2003 au 04/10/2006. Si le réacteur a dû être arrêté quelques jours pendant un palier, ce temps de refroidissement n'est décrit qu'à la fin du palier. Un seul niveau de flux moyen par palier.
- Modélisation de l'historique par un seul palier d'irradiation à 563 MWth pour les périodes avant le 15/07/2003 afin d'obtenir le taux de combustion souhaité et avec inclusion des deux grands arrêts de 4 et 7 ans pour rénovation.

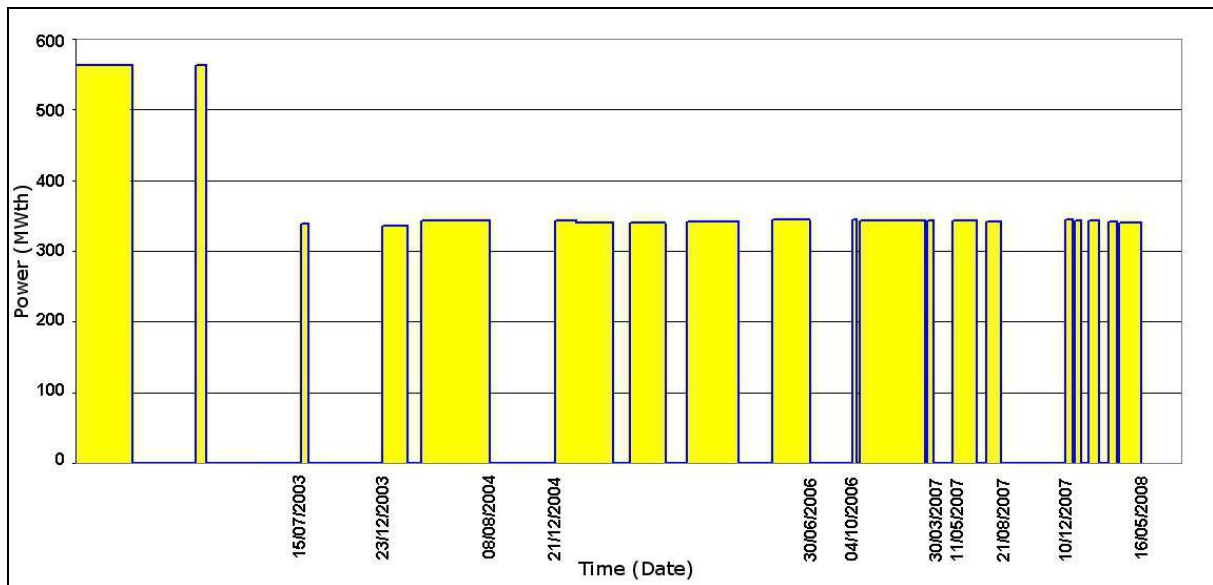


Fig. II.2 : Modélisation de l'historique d'irradiation du réacteur PHENIX.

Les paliers d'irradiation ont tous des puissances comprises entre 340 et 345 MWth.

De cet historique d'irradiation du réacteur (aussi appelé diagramme de marche), l'historique d'irradiation de chacun des assemblages peut être déduit. En effet, les assemblages entrent et sortent du cœur à des moments différents de la vie du réacteur et à des moments différents les uns des autres. Certains assemblages entrent en cœur, sont ensuite mis à refroidir dans les

emplacements du stockage interne, puis retournent en cœur avant d'en être retirés définitivement. Ainsi, pour rendre compte de ces mouvements, les assemblages sont regroupés dans 26 historiques d'irradiation assemblages différents.

### 3) Modélisation du cœur du réacteur PHENIX

Seuls les assemblages fissiles et fertiles vont bénéficier d'une description précise de leurs historiques d'irradiation et de leurs données nucléaires. Le paragraphe précédent a montré que leurs historiques pouvaient être très différents, en particulier au niveau des temps d'irradiation. Ainsi, certains assemblages ont été changés de place au cours de leur irradiation. Cependant, s'ils ont changé de couronne, ils sont restés dans la même zone du cœur à savoir la zone de cœur interne, externe, fertile 1 ou fertile 2.

Suite à cette dernière remarque, il a été décidé de moyenner les résultats neutroniques (flux, spectre, sections) du calcul cœur pour chaque zone décrite par la **figure II.3**.

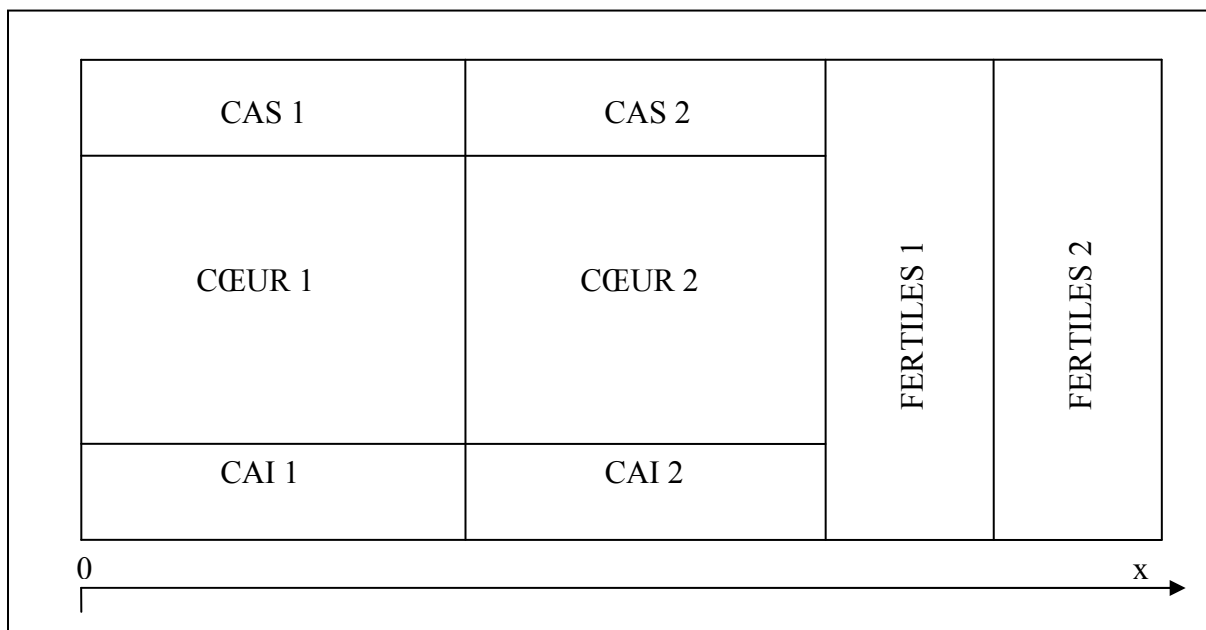


Fig. II.3 : Description des zones du cœur (COEUR1 et COEUR2 sont les parties centrales de composition fissile des assemblages fissiles ; CAS1, CAS2, CAI1 et CAI2 sont les couvertures axiales supérieures et inférieures de composition fertile des assemblages fissiles).

## **B – Création d’une image du cœur pour la modélisation neutronique de l’essai PUIREX**

L’objectif est de créer une image du cœur qui puisse rendre compte de la neutronique pendant le dernier palier d’irradiation avant l’essai PUIREX. La puissance résiduelle aux temps courts dépend des produits de fission à vie courte. La concentration de ces noyaux dépend fortement des conditions d’irradiation à la fin du dernier palier d’irradiation.

Cependant, ce schéma de cœur va être utilisé pour modéliser tous les paliers d’irradiation que vont subir les assemblages. Or ces autres paliers d’irradiation ont des schémas de cœur légèrement différents, en particulier certains assemblages ont changé de place, sont entrés en cœur ou ont été remplacés. De façon à pouvoir utiliser un unique schéma de cœur pour tous les paliers d’irradiation, certaines approximations sont nécessaires.

### **1) Création de l’image du cœur**

Excepté pour le premier démarrage, un réacteur est composé d’assemblages ayant subi des historiques d’irradiation différents. Si dans le parc de réacteurs à eau pressurisée électrogènes français, les assemblages ont un roulement en tiers ou en quart de cœur, le réacteur PHENIX, de par sa fonction de prototype, est composé d’assemblages ayant des historiques d’irradiation un peu plus hétéroclites (cycles de 120 JEPP, remplacement de 1/5 du cœur à mi-cycle, possibilité d’attente en stockage interne).

Puisqu’il n’y aura qu’un seul calcul de neutronique réalisé avec la description du dernier chargement, et qu’en conséquence les endroits de chargement des assemblages ne seront pas suivis pour le calcul d’évolution, il a été décidé de représenter le cœur sous la forme de couronne (voir **figure II.4**) et que chaque couronne ait une composition égale à la composition moyenne de ses assemblages.



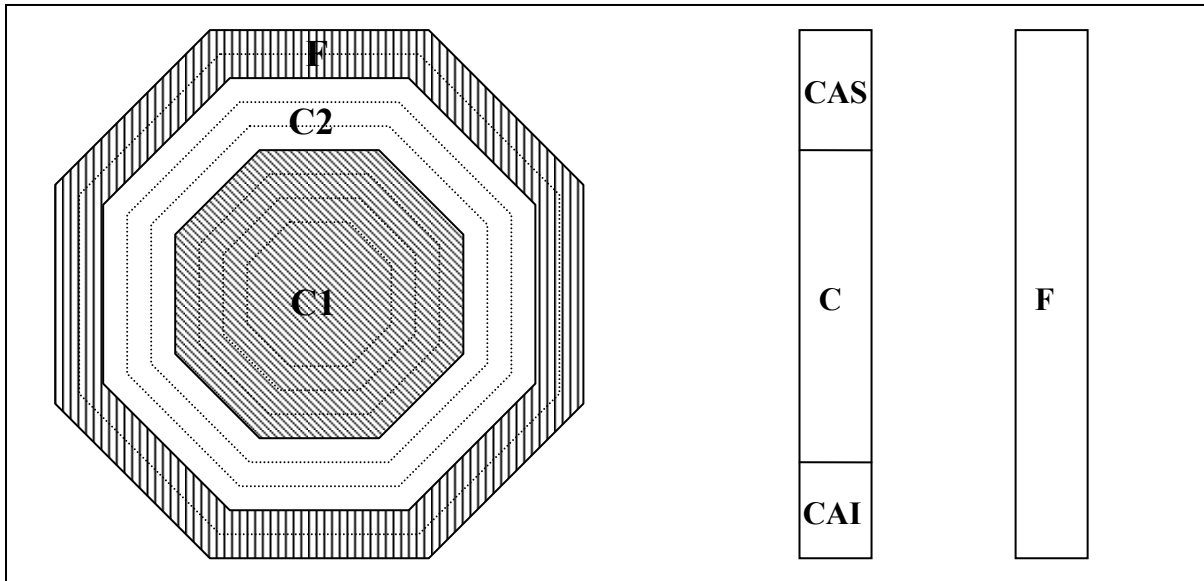


Fig. II.4 : Description du cœur en couronnes (C1 : Cœur interne, C2 : Cœur externe, F : Fertile, CAS : Couverture Axiale Supérieure, CAI : Couverture Axiale Inférieure).

## 2) Description des assemblages pour le calcul cellule ECCO

Un calcul cellule est réalisé pour chaque division axiale de chaque assemblage moyen représentant une couronne. L'assemblage moyen est divisé en 9 parcelles axiales (schéma recommandé) : 2 dans la couverture axiale inférieure, 2 dans la couverture axiale supérieure et 5 dans la partie cœur. Cette division en parcelle axiale permet d'obtenir la variation axiale du flux neutronique 2D.

La composition des assemblages présents dans le cœur provient du formulaire de suivi de l'évolution de la centrale PHENIX : GEPHIX. Ce formulaire décrit les noyaux lourds et utilise un seul produit de fission solide pour décrire tous les produits de fission non gazeux présents dans les assemblages. ERANOS, avec la bibliothèque JEFF3.1.1 décrit 19 produits de fission solide.

Le solveur ECCO permet de décrire les assemblages de forme axiale. La description des assemblages est effectuée avec le plus de détail possible (voir **figure II.5**). Les simplifications effectuées sur la description sont la dilution du fil espaceur des aiguilles dans la gaine, la dilution de l'écart entre la gaine et le combustible ainsi que d'un éventuel trou central dans les aiguilles combustibles.

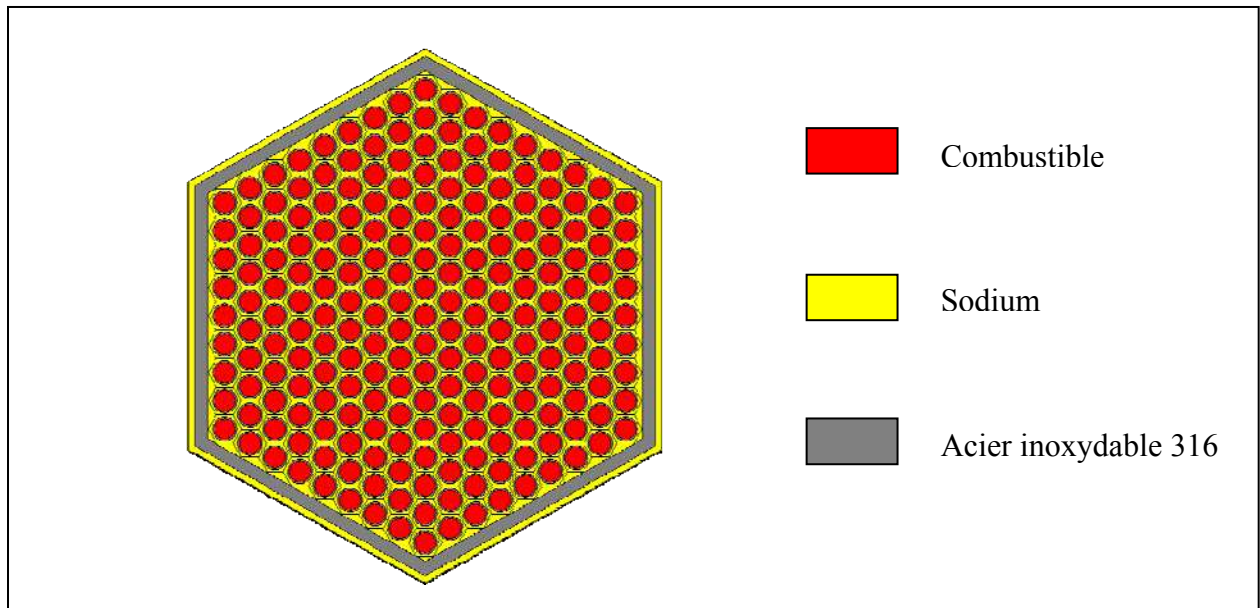


Fig. II.5 : Schéma de la modélisation d'un assemblage PHENIX sous ECCO.

Le calcul de transport est réalisé avec un découpage énergétique à 1968 groupes. Ce calcul permet d'obtenir les sections efficaces auto-protégées des noyaux lourds. Celles-ci sont condensées à 33 groupes et traitées pour un assemblage homogénéisé.

### 3) Calcul cœur de neutronique avec VARIANT

Chaque parcelle d'assemblage homogénéisée est ensuite placée dans la description du cœur. La résolution de l'équation de transport est réalisée par une méthode AVNM (Advance Variational Nodal Method). Un flux à 33 groupes d'énergie est obtenu. ERANOS réalise l'homogénéisation des parcelles pour chaque couronne et condense le flux et les sections à 1 groupe d'énergie. Il conserve aussi un spectre à 33 groupes d'énergie.

## II – Calcul des puissances résiduelles des composants

Suite à la création des jeux de données précédents, nous pouvons calculer les caractéristiques neutroniques du cœur du réacteur PHENIX pendant l'expérience PUIREX, puis calculer la puissance résiduelle de chacun des assemblages et enfin en déduire la puissance résiduelle totale.

## A – Caractéristiques neutroniques du cœur du réacteur

Les résultats sur le flux neutronique, les sections efficaces de capture et de fission importantes ainsi que le spectre sont représentés dans le **tableau II.1** et sur la **figure II.6**.

D'après le **tableau II.1**, le niveau du flux neutronique ( $\Phi$ ) est maximum dans la partie centrale du réacteur (CŒUR C1) avec une valeur de  $2,95.10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/s. Ce flux neutronique décroît avec l'éloignement du centre du cœur que ce soit axialement ou radialement. Les sections efficaces des noyaux sont plus faibles au niveau de la partie cœur car d'après la **figure II.6**, les neutrons y ont plus d'énergie et les réactions sont en conséquence moins probables (variation en « $1/v$ » des sections efficaces d'absorption). Néanmoins, du fait du grand écart sur les flux neutroniques entre les compositions fissiles et fertiles, les taux de réactions sont les plus importants dans les CŒUR C1 et C2.

$\Phi$ (n/cm <sup>2</sup> /s))		C1		C2		FEF		FEG	
$\sigma^c$ (b)	$\sigma^f$ (b)								
CAS	$\Phi$	$3,74.10^{14}$		$3,07.10^{14}$					
	<sup>235</sup> U	1.128	2.989	1.402	3.516				
	<sup>238</sup> U	0.434	0.012	0.509	0.012				
	<sup>239</sup> Pu	1.287	2.562	1.696	3.016				
	<sup>240</sup> Pu	1.323	0.223	1.800	0.216				
	<sup>241</sup> Pu	0.907	3.900	1.117	4.586				
	<sup>242</sup> Pu	0.970	0.124	1.208	0.117				
	<sup>241</sup> Am	3.361	0.122	4.078	0.122				
CŒUR	$\Phi$	$2,95.10^{15}$		$1,98.10^{15}$		$5,96.10^{14}$		$2,95.10^{14}$	
	<sup>235</sup> U	0.549	1.897	0.528	1.861	0.880	2.523	1.212	3.151
	<sup>238</sup> U	0.276	0.046	0.269	0.050	0.359	0.022	0.440	0.014
	<sup>239</sup> Pu	0.493	1.799	0.470	1.786	0.939	2.187	1.416	2.697
	<sup>240</sup> Pu	0.481	0.407	0.461	0.426	0.930	0.277	1.551	0.225
	<sup>241</sup> Pu	0.471	2.509	0.456	2.465	0.724	3.304	0.993	4.143
	<sup>242</sup> Pu	0.468	0.294	0.451	0.311	0.760	0.174	1.057	0.126
	<sup>241</sup> Am	1.768	0.299	1.708	0.319	2.705	0.172	3.635	0.129
CAI	$\Phi$	$9,55.10^{14}$		$5,92.10^{14}$					
	<sup>235</sup> U	1.042	2.830	1.047	2.839				

## PARTIE II

$^{238}\text{U}$	0.416	0.021	0.419	0.020				
$^{239}\text{Pu}$	1.150	2.428	1.169	2.441				
$^{240}\text{Pu}$	1.165	0.269	1.195	0.264				
$^{241}\text{Pu}$	0.845	3.696	0.850	3.711				
$^{242}\text{Pu}$	0.896	0.166	0.905	0.161				
$^{241}\text{Am}$	3.117	0.168	3.137	0.163				

Tab. II.1 : Valeurs des flux et sections efficaces de fission et de capture (en barn) des éléments principaux dans les différentes parties du réacteur.

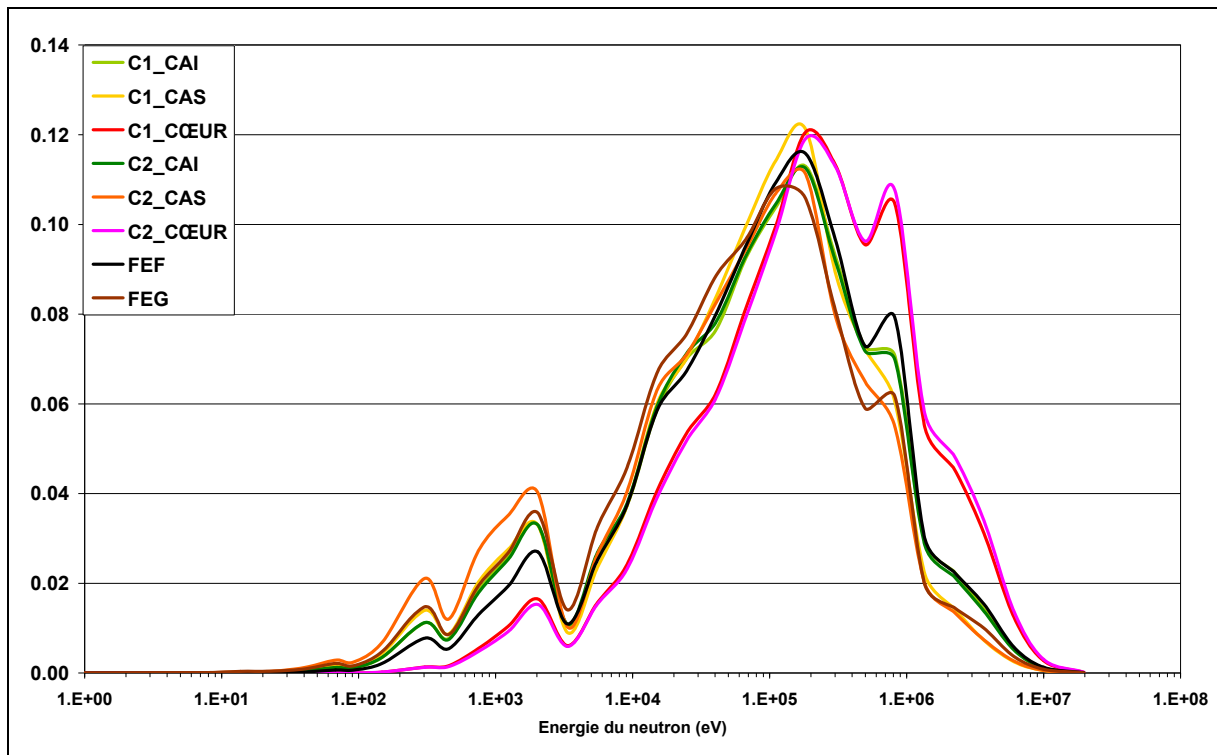


Fig. II.6 : Représentation des différents spectres neutroniques dans le réacteur au cours de l'expérience.

## B – Résultats sur la puissance résiduelle après le calcul d'évolution

### 1) Résultat de la puissance résiduelle totale et comparaison calcul/expérience

La somme des contributions des différents assemblages ainsi que des structures et du sodium permet d'obtenir le résultat de la modélisation de la puissance résiduelle totale. La **figure II.7** représente les courbes de puissance résiduelle expérimentale et numérique ainsi que l'écart entre les deux (en prenant l'expérience comme référence).

## PARTIE II

L'écart calcul/mesure est compris entre  $[-8\% ; 8\%]$  ce qui est satisfaisant et comparable aux incertitudes expérimentales (entre 4 et 11 %). Toutefois, cet écart varie linéairement avec le temps de refroidissement ce qui peut supposer un biais constant. L'hypothèse de l'ajout d'une contribution constante durant toute la durée de l'essai permettant de s'opposer à la variation de l'écart calcul/mesure n'est pourtant pas la bonne explication. Un ajout de 8 % de puissance résiduelle à 12 jours de refroidissement correspond à une valeur absolue de  $60 \text{ kW}_{\text{th}}$ . Or, à deux jours de refroidissement, un ajout de  $60 \text{ kW}_{\text{th}}$  fait grandir l'écart calcul/mesure de 4% ce qui ne va pas dans le sens de l'amélioration de l'écart.

Il est nécessaire d'avoir plus d'éléments de comparaison. Pour cela, il faut évaluer l'incertitude du calcul numérique pour pouvoir comparer les résultats précédents avec leurs barres d'incertitudes. Deux résultats sont possibles. Premièrement un recouvrement des barres d'incertitude qui permettrait de conclure que le calcul et l'expérience ne sont pas assez précis pour permettre de comprendre la variation de l'écart calcul/mesure. Deuxièmement un non recouvrement qui permettrait plusieurs hypothèses dont par exemple : la modélisation est non représentative de l'essai (biaisée), ou alors les incertitudes expérimentales ou de calcul sont sous estimées.

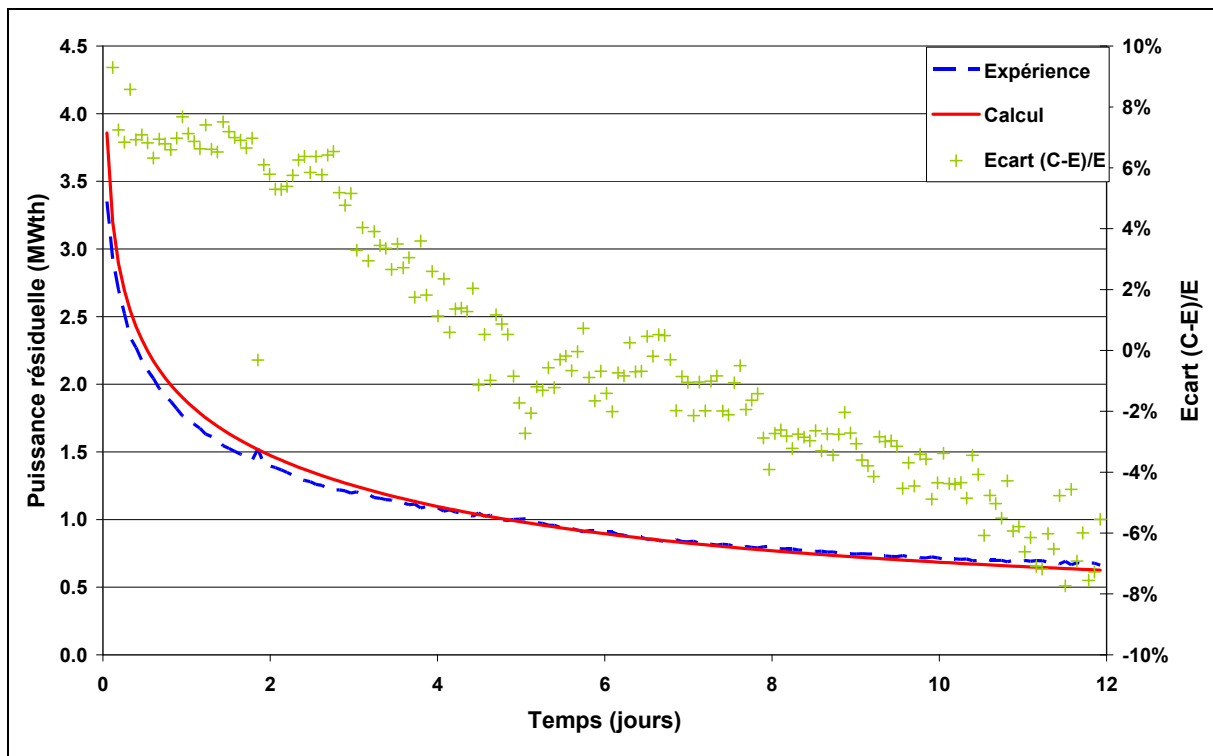


Fig. II.7 : Puissance résiduelle expérimentale et calculée de l'essai PUIREX 2008 (échelle de gauche) et écart Calcul/Expérience (échelle de droite).

## 2) Sélection des contributeurs majoritaires à la puissance résiduelle

Puisqu'il manque une incertitude associée au calcul précédent, il est intéressant, compte tenu du nombre phénoménal de données nucléaires impliquées dans le calcul, de sélectionner les composants de cette puissance résiduelle qui contribuent le plus à celle-ci. La puissance résiduelle totale ayant été obtenue par la somme de toutes les contributions, il est aisé de comparer les composants, les types d'assemblages et les zones du réacteur entre eux.

### a) Comparaison des éléments du réacteur

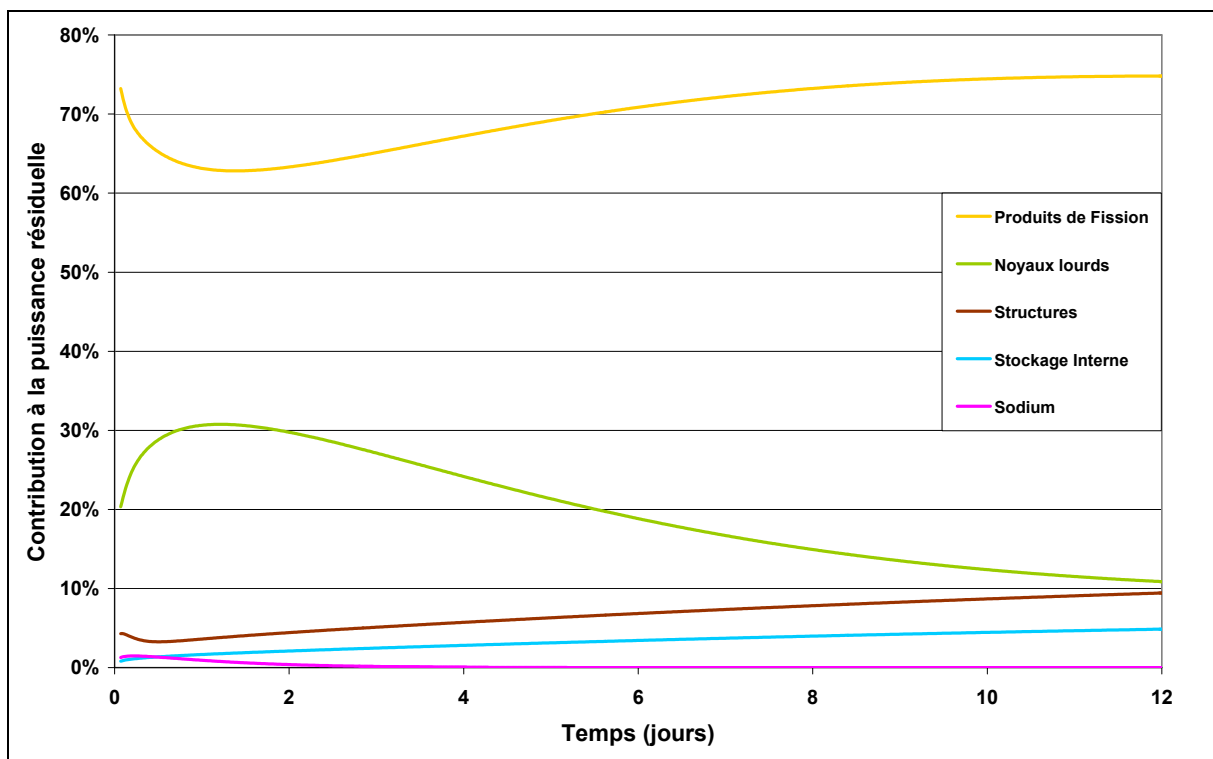


Fig. II.8 : Contributions des différents composants du cœur de PHENIX.

La **figure II.8** permet de comparer la puissance libérée par les assemblages fissiles et fertiles (« produits de fission » et « noyaux lourds ») par rapport aux éléments périphériques du cœur : les assemblages présents en stockage interne, les structures et le sodium. Le cœur du réacteur, est de loin le contributeur majoritaire. La somme de sa composante « produits de fission » et « noyaux lourds » correspond à plus de 85 % de la puissance résiduelle tout au long des 12 jours de refroidissement. Il faut remarquer que la composante « noyaux lourds » est clairement non négligeable puisqu'elle représente jusqu'à 30 % de la puissance résiduelle totale à 1 jour de refroidissement. Le sodium est un composant minoritaire puisqu'il ne

## PARTIE II

dépasse pas 1 % de la puissance résiduelle totale. Au fur et à mesure que la puissance résiduelle décroît, les assemblages en stockage interne ainsi que les structures prennent plus de poids. Au bout de 12 jours de refroidissement, la somme de leur contribution est de l'ordre de 15 %.

Le calcul de l'incertitude devra donc prendre en compte les trois composantes principales : les assemblages fissiles et fertiles du cœur, les assemblages en stockage interne et les structures. L'activation du sodium sera négligée.

### b) Comparaison des zones du cœur

Il est intéressant maintenant de comparer la puissance résiduelle provenant des différentes zones du cœur pour deux raisons : la **figure II.8** a montré que le cœur représente plus de 85 % de la puissance résiduelle totale, et c'est l'endroit du réacteur où les conditions neutroniques et les compositions isotopiques sont les plus différentes (donc où diminuer le nombre de contributeurs permettra de réduire drastiquement le temps de calcul).

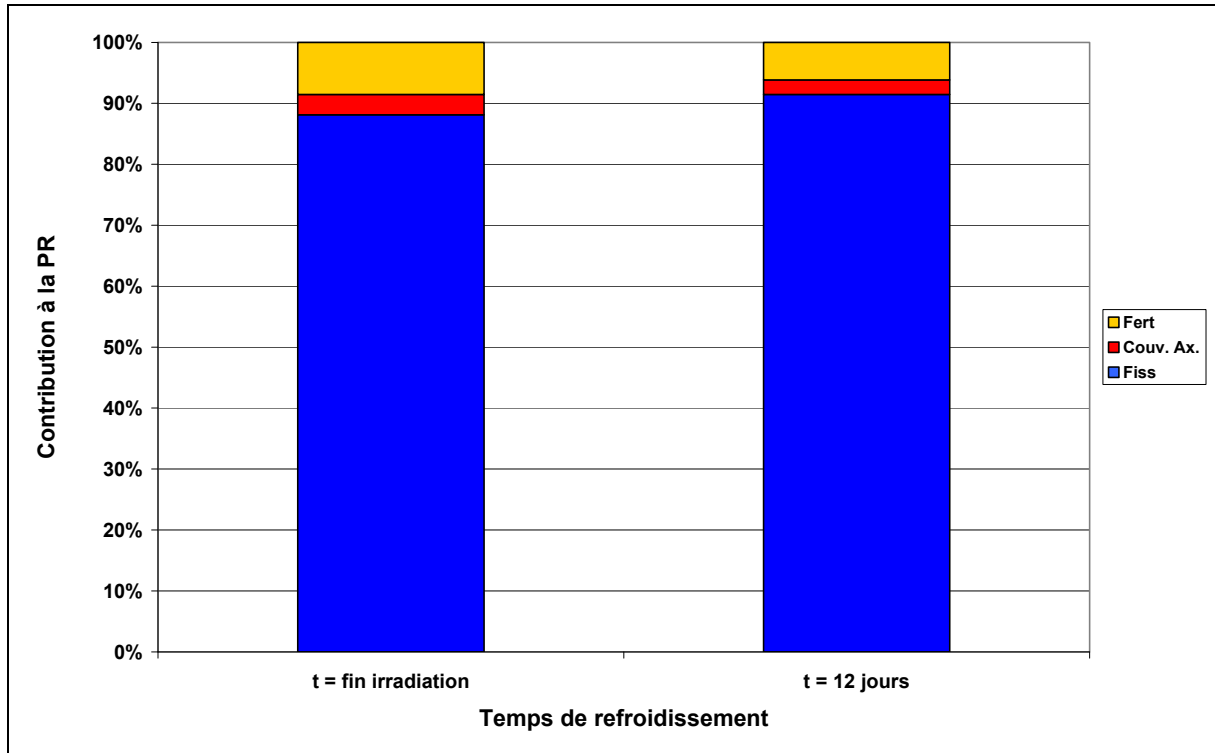


Fig. II.9 : Contributions des différentes parties du cœur à la puissance résiduelle cœur.

## PARTIE II

Il y a trois grandes zones dans le réacteur : la zone de composition fissile, la zone de composition fertile (2 couronnes fertiles), et la zone des couvertures axiales (elle aussi de composition fertile mais se trouvant dans des assemblages fissiles) (voir **figure II.3**). La **figure II.9** montre qu'environ 90 % de la puissance résiduelle provient des assemblages fissiles et que les couvertures axiales fertiles ont un rôle minime. Elle montre aussi qu'il n'y a pas d'évolution notable de cette répartition durant l'essai.

Il convient donc d'étudier deux sortes d'assemblages : les assemblages fissiles pour leur partie de composition fissile (hors couvertures axiales fertiles), et les assemblages fertiles. Les couvertures axiales fertiles des assemblages fissiles seront donc négligées.

Enfin, il y a deux zones différentes composées d'assemblages fissiles dans le cœur (cœur interne et cœur externe) ainsi que deux couronnes différentes composées d'assemblages fertiles. La **figure II.10** montre qu'aucune de ces zones ne peut être ignorée car toutes représentent au moins 5 % de la puissance résiduelle à un moment du refroidissement.

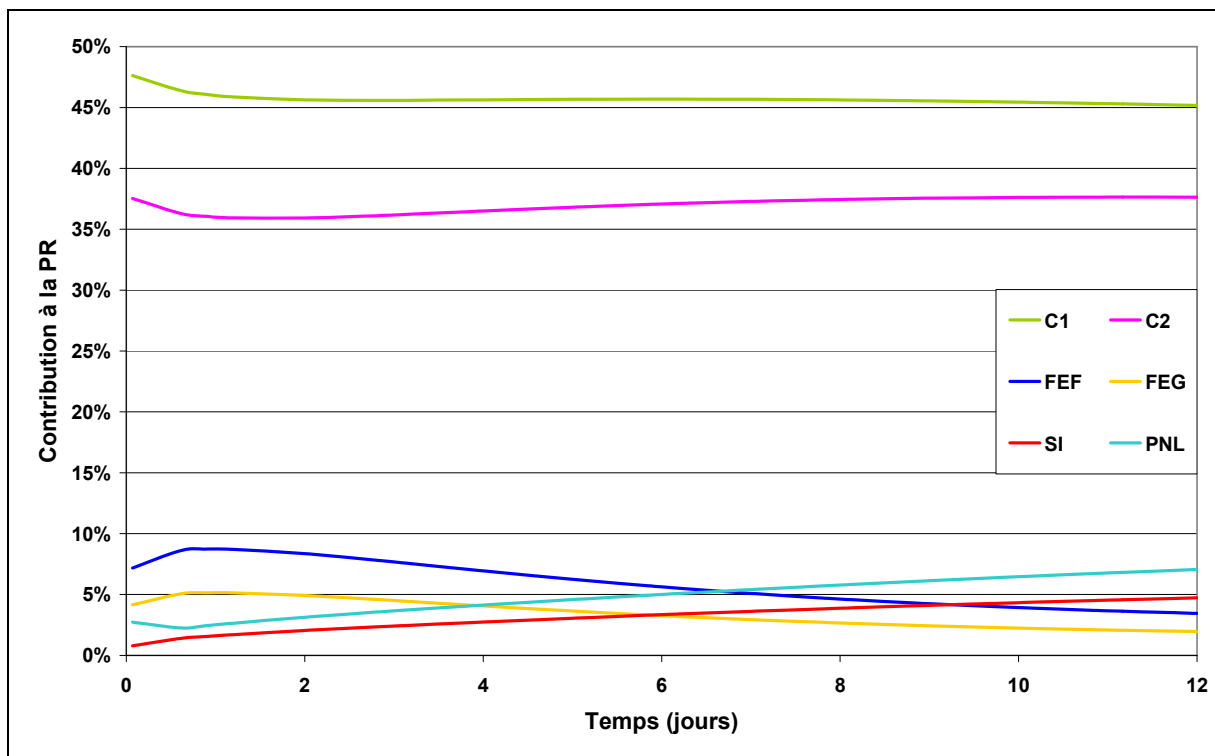


Fig. II.10 : Contributions des différentes parties du cœur à la puissance résiduelle totale (C1 : CŒUR1, C2 : CŒUR2, FEF, FEG : Fertile en couronne F ou G, SI : Stockage interne, PNL : Protections neutroniques latérales (assemblages aciers et graphites, rondins acier, sommier, faux sommier)).



Pour conclure ce chapitre, l'étude présentée sur l'essai PUIREX de 2008 montre que la physique, telle qu'elle est connue à ce jour, et telle qu'elle est modélisée dans le formulaire DARWIN, permet de calculer la puissance résiduelle d'un réacteur avec un écart par rapport à la valeur expérimentale inférieur à 10 %.

De plus, cette étude permet de comparer, par le calcul, les éléments contribuant à la puissance résiduelle et de les classer du plus contributeur au moins contributeur. De ce classement, il ressort que les éléments du réacteur les plus contributeurs à la puissance résiduelle sont les assemblages fissiles et fertiles du cœur, les assemblages placés en stockage interne et les structures en acier et en graphite servant de protection neutronique. A l'inverse, les éléments les moins contributeurs et qui seront négligés pour le calcul des incertitudes sont les parties fertiles des assemblages fissiles et le sodium.

Enfin, la contribution des structures, à la différence des assemblages du cœur, n'est due qu'à la contribution de quelques noyaux (voir partie I). Ainsi, l'incertitude de cette composante, qui sera prise en compte pour le calcul de l'incertitude totale de la puissance résiduelle, ne sera pas revue dans la suite de l'étude. A l'inverse, l'incertitude de la puissance résiduelle due aux assemblages fissiles et fertiles va être précisément calculée et analysée que ce soit pour la contribution des produits de fission (la plus importante) que pour celle des noyaux lourds (jusqu'à 30 % après 1 jour de refroidissement).

## **Chapitre 2 – Identification et analyse des données nucléaires impactant la puissance résiduelle dans les assemblages fissiles et fertiles**

Le combustible des assemblages fissiles et fertiles est le contributeur majoritaire et quasiment exclusif de la puissance résiduelle. Ce combustible est composé, à la fin de l'irradiation, de produits de fission et de noyaux lourds. La décroissance des noyaux instables libère de l'énergie par rayonnements alpha, bêta et gamma, et produit de nouveaux noyaux. L'évolution de ces noyaux est régie par leurs données nucléaires suivant les équations d'évolution.

La bibliothèque JEFF3.1.1 (Joint Evaluated Fission and Fusion File) [4] contient les données nucléaires de 3852 noyaux. Or, la plupart des noyaux présents dans cette bibliothèque n'ont qu'une contribution mineure, voire nulle (car non produits), à la puissance résiduelle.

En conséquence, l'objectif de ce chapitre est de sélectionner les noyaux pertinents pour la description de la puissance résiduelle, et de modéliser les chaînes d'évolution les plus simples possibles permettant de calculer la concentration de ces noyaux que ce soit en irradiation ou en refroidissement, tout en gardant la meilleure représentativité. Ce travail permettra de se focaliser uniquement sur les données importantes.

### **I – Sélection des noyaux nécessaires à la modélisation de la puissance résiduelle**

Pour calculer l'incertitude de la puissance résiduelle due aux données nucléaires, il est nécessaire de connaître dans un premier temps les noyaux responsables de la puissance résiduelle, et dans un deuxième temps de modéliser correctement leur évolution de manière à être représentatif du traitement numérique réalisé pour calculer la valeur de la puissance résiduelle.

## A – Identification des noyaux responsables de la puissance résiduelle

L'étude ci-dessous identifie les noyaux responsables de la puissance résiduelle pour un assemblage de cœur interne de PHENIX irradié selon les données neutroniques définies dans la partie 1 et pour une durée de 1 an. Ceci est représentatif de l'irradiation des assemblages fissiles de PHENIX. La gamme des temps de refroidissement va de 1 secondes à  $10^9$ s, soit 30 ans. Ceci permet d'étudier les effets aux temps courts – pouvant répondre aux problématiques des accidents graves – mais aussi aux temps longs – problématiques des premières années de stockage du combustible usé à l'usine de retraitement de la Hague.

Il n'a pas été envisagé d'étudier des temps plus longs durant la thèse puisque les études antérieures (voir la partie INTRODUCTION) ont été majoritairement réalisées sur des produits de fission et que 30 ans est à peu près la limite de contribution de la majeure partie des produits de fission.

### 1) Définition d'un critère de sélection des noyaux

Afin d'identifier les noyaux responsables de la puissance résiduelle, il est nécessaire de calculer la quantité de puissance résiduelle due à chaque noyau pour chacun des temps de refroidissement étudié. Ceci sera la définition de la contribution d'un noyau à la puissance résiduelle.

$$C_i(t) = \frac{PR_i(t)}{PR(t)}$$

Avec,

$C_i$  : la contribution du noyau  $i$  à la puissance résiduelle,

$PR_i$  : la puissance résiduelle due au noyau  $i$ ,

$PR$  : la puissance résiduelle totale.

A partir de ce rapport, il est alors possible de définir un critère de sélection afin de ne conserver que les noyaux les plus importants. Les critères de sélection conservés sont les suivant : une contribution supérieure ou égale à 1 %, 0,5 %, 0,1 % ou 0,01 %.

Cependant le but est aussi d'être représentatif de la puissance résiduelle totale. Il est donc nécessaire de coupler le critère précédent à un autre critère : la quantité de puissance résiduelle modélisée par les noyaux sélectionnés par le premier critère. Ce nouveau critère est arbitrairement choisi supérieur à 99 %. Cela semble être de prime abord, une bonne représentation de la puissance résiduelle. Néanmoins, les paragraphes 2 et 3 suivants donneront l'occasion de revenir sur la justification de ce critère.

Il eut été possible de fixer la quantité de puissance résiduelle modélisée pour ensuite obtenir un critère de sélection sur la contribution minimale des noyaux à la puissance résiduelle. Les courbes de Laugier (voir **figure II.11**), similaires aux courbes de la **figure II.12**, procèdent de cette manière.

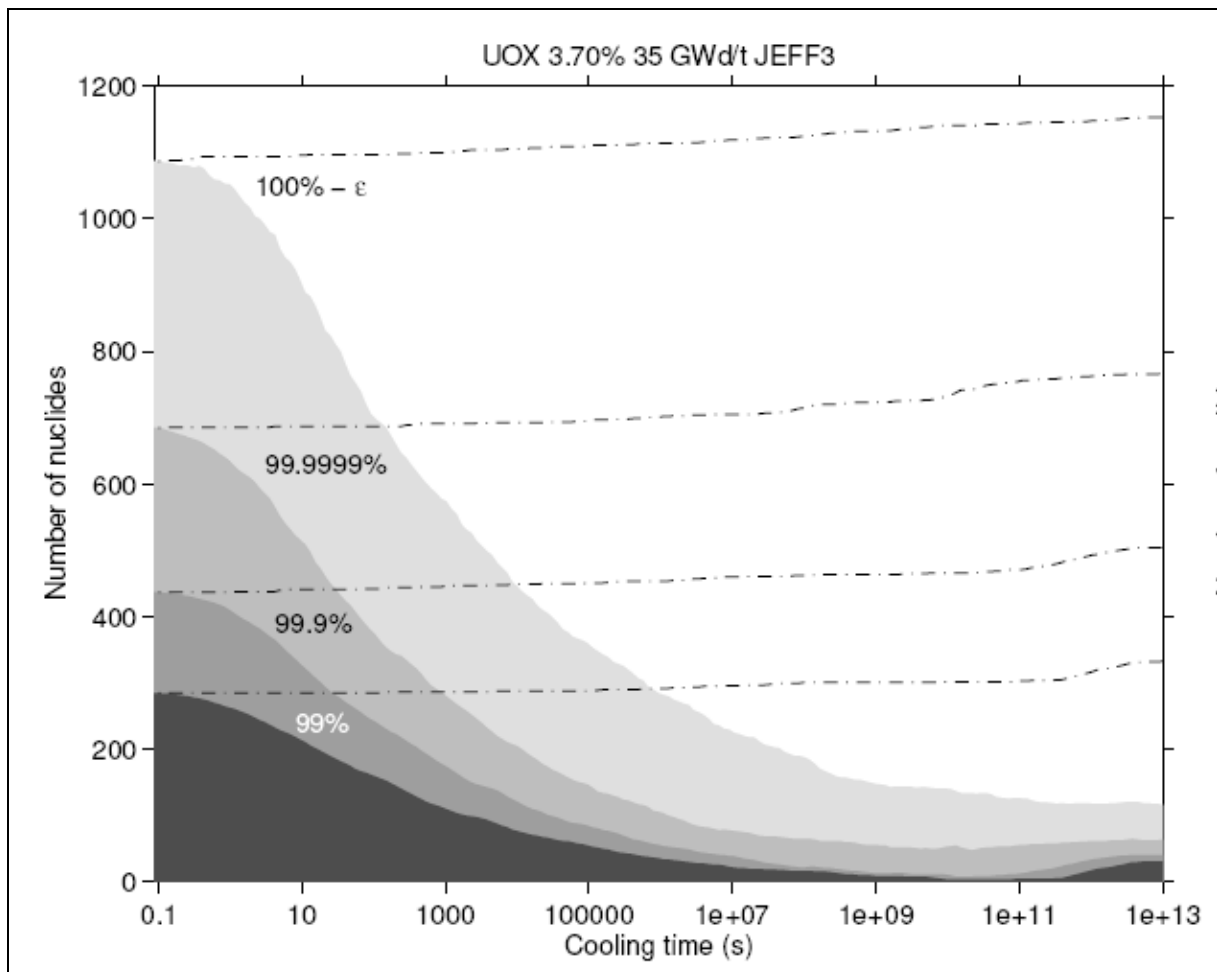


Fig. II.11 : Courbes de Laugier [5]

Ce critère est intéressant pour une définition précise de la puissance résiduelle, cependant, il induit une variation du critère de contribution avec le temps de décroissance. Il paraît plus commode d'avoir un critère de contribution fixe, et plus visuel que celui-ci soit un chiffre rond.

## 2) Identification des noyaux responsables de la puissance résiduelle

Suite au calcul de la puissance résiduelle et à l'utilisation des critères de sélection, la **figure II.12** permet d'affiner le choix des critères pour la sélection des noyaux et de tirer quelques conclusions sur les coûts en temps des futurs calculs.

Tout d'abord, cette figure permet d'illustrer deux choses : la précision requise afin de décrire finement la puissance résiduelle, le coût que cette précision requière en termes de nombre de noyaux. Le gain de quelques pourcents sur la quantité de puissance résiduelle modélisée induit une forte augmentation du nombre de noyaux à étudier.

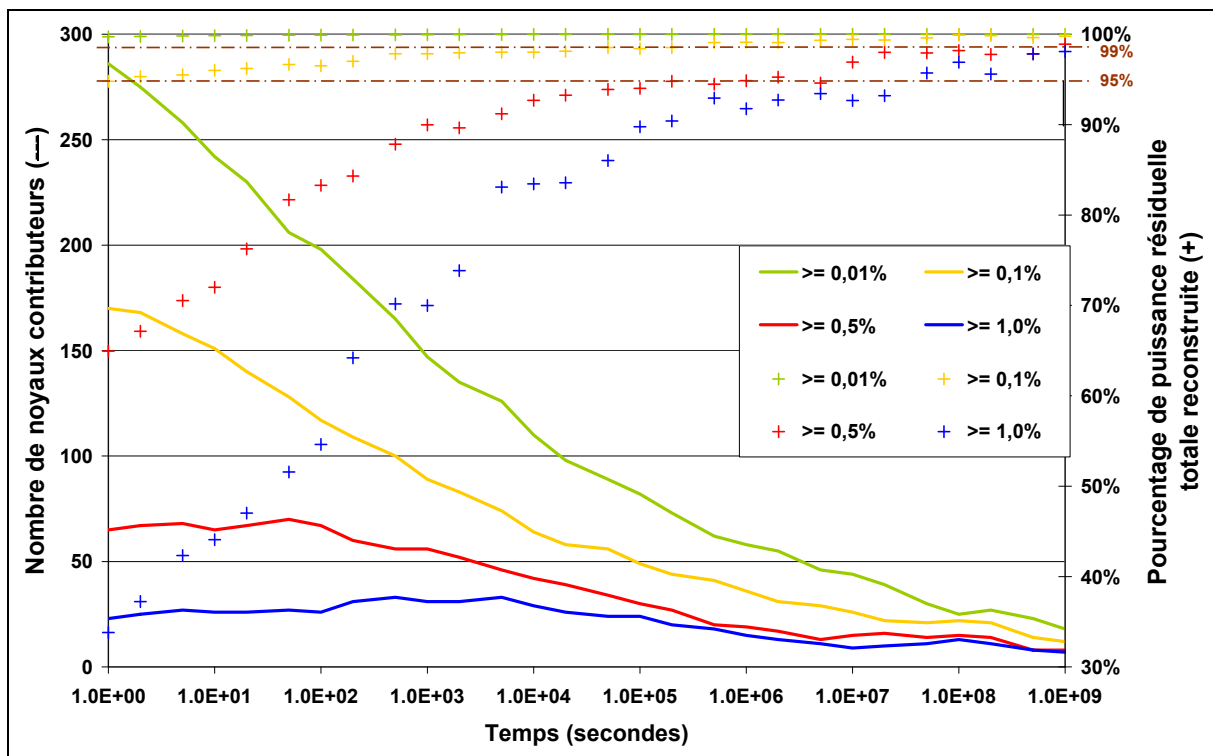


Fig. II.12 : Critère de sélection des noyaux contributeurs à la puissance résiduelle.

Ensuite, il est clair, que les critères 0,5 % et 1 % ne sont pas suffisants pour décrire la puissance résiduelle suffisamment finement quel que soit le temps de décroissance car le

pourcentage total de puissance résiduelle modélisé est inférieur à 99 %. Pour la même raison, même si ce n'est qu'aux temps courts, le critère de 0,1 % ne peut, lui non plus, être retenu. Le critère conservé est donc une contribution individuelle de chaque noyau supérieure ou égale à 0,01 % à la puissance résiduelle totale.

Il est possible, pour plus de lisibilité, de résumer les deux critères de sélection des noyaux de la façon suivante :

$$\forall t \in [1; 10^9] \text{ secondes} \quad \left\{ \begin{array}{l} C_i(t) \geq 0,01 \% \\ \sum_i C_i(t) \geq 99 \% \end{array} \right.$$

Au total, ce sont donc 369 noyaux qu'il est nécessaire de modéliser pour décrire la puissance résiduelle sur l'intervalle de temps  $[1 ; 10^9]$  secondes. Parmi ces 369 noyaux, 351 sont des produits de fission et 18 sont des noyaux lourds ( $^{237,239}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,240m}\text{Np}$ ,  $^{238,239,240,241,242,243}\text{Pu}$ ,  $^{241,242,243}\text{Am}$ ,  $^{242,243,244}\text{Cm}$ ). Ainsi, outre une modélisation des produits de fission, il est nécessaire de créer une chaîne de réaction pour les noyaux lourds. Il a été décidé de traiter ces chaînes (noyaux lourds, produits de fission) de manière séparée car la plupart des données nucléaires des noyaux lourds n'ont pas d'impact sur les produits de fission et que les produits de fission n'ont aucun impact sur les noyaux lourds (l'aspect évolution du flux neutronique dû aux poisons n'est pas analysé).

## B – Création des chaînes de réactions pour les produits de fission

### 1) Sélection des noyaux lourds nécessaires à la modélisation des produits de fission sélectionnés

Les produits de fission proviennent de la fission de noyaux lourds. Pour décrire l'évolution de leur concentration, il est nécessaire de décrire l'évolution de la concentration des noyaux lourds qui les produisent. Le formulaire DARWIN décrit 19 systèmes fissiles. Or la plupart de ces noyaux n'ont qu'une contribution mineure à la formation des produits de fission. Afin de ne pas alourdir les calculs, une sélection des noyaux lourds s'impose. Deux étapes sont nécessaires : identifier les noyaux lourds responsables de la majorité des fissions et analyser

## PARTIE II

l'évolution de leur concentration pendant l'irradiation afin de savoir si cette concentration nécessite l'ajout de noyaux lourds supplémentaires afin d'être correctement décrite.

### a) Répartition des fissions sur les assemblages fissiles et fertiles de PHENIX

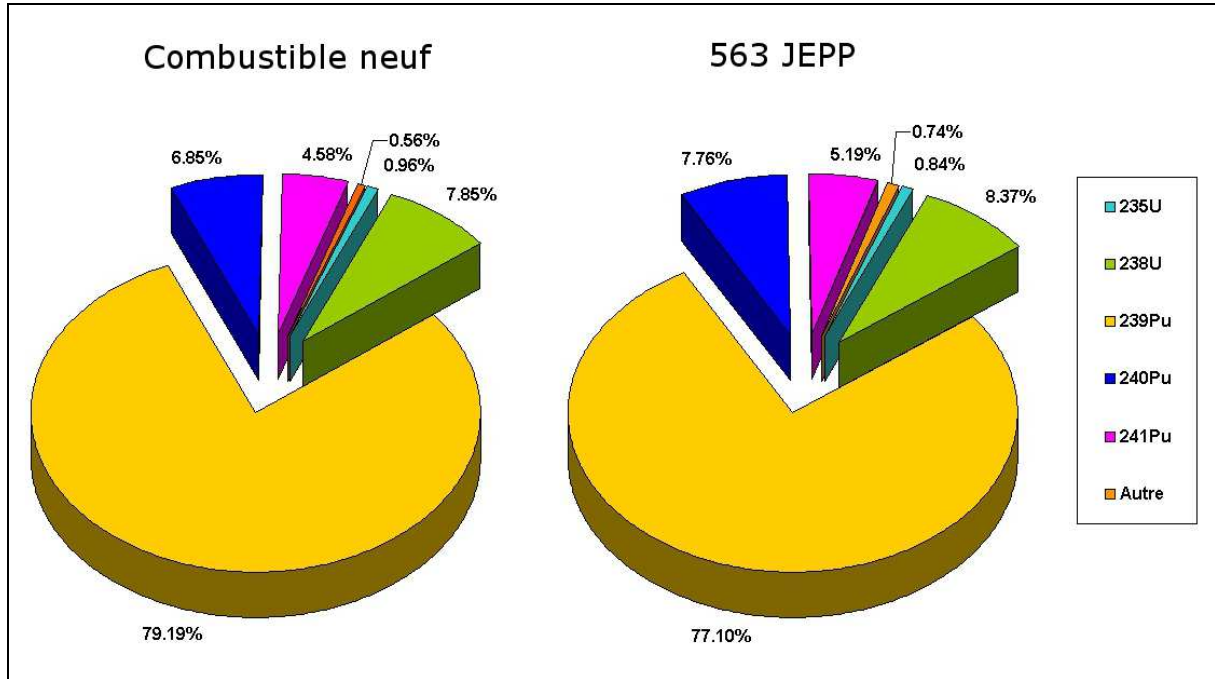


Fig. II.13 : Répartition des fissions pour un assemblage fissile de PHENIX (composition signalée dans la partie I paragraphe III.B.2.

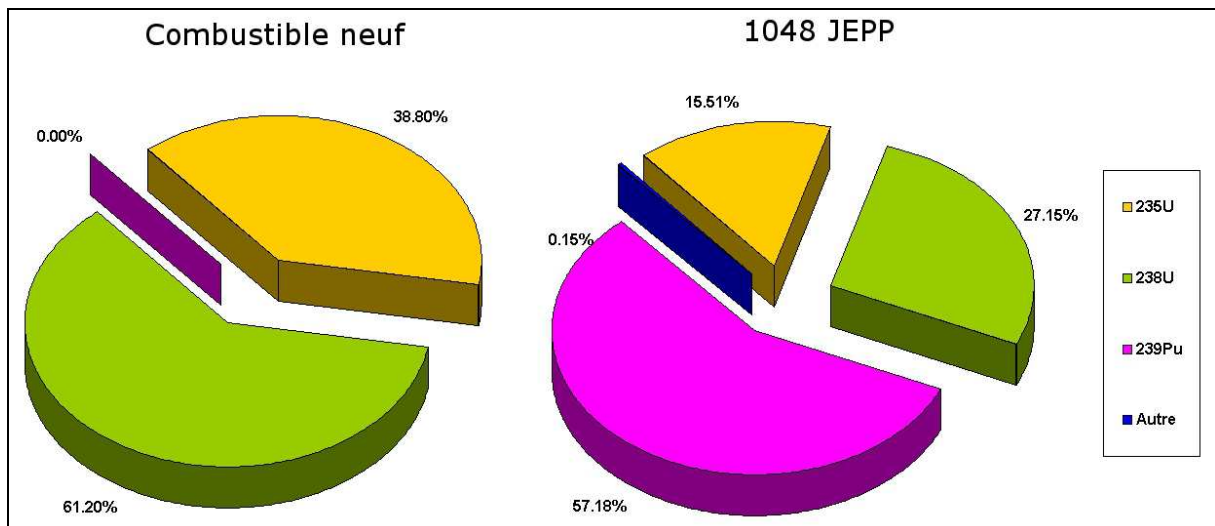


Fig. II.14 : Répartition des fissions pour un assemblage fertile de PHENIX (composition signalée dans la partie I paragraphe III.B.2.

## PARTIE II

Les répartitions des fissions pour un assemblage fissile et pour un assemblage fertile de PHENIX ont été calculées au début de l'irradiation et après un temps moyen d'irradiation (ce temps d'irradiation est défini par le nombre de Jours Equivalent Pleine Puissance (JEPP)). Elles sont présentées sur la **figure II.13** et sur la **figure II.14**. Un assemblage fertile restant plus longtemps en réacteur, son nombre de JEPP est plus grand.

Le  $^{239}\text{Pu}$  est clairement l'élément majoritaire que ce soit pour les assemblages fissiles ou fertiles. L' $^{238}\text{U}$  a lui aussi un impact assez important. Pour le cas des assemblages fertiles, la seule prise en compte de l' $^{235}\text{U}$  en plus des deux noyaux précédents est suffisante pour représenter plus de 99 % des fissions. Pour les assemblages fissiles, en plus de l' $^{235}\text{U}$ , les  $^{240,241}\text{Pu}$  sont à prendre en compte pour que la somme des fissions de ces noyaux corresponde à plus de 99 % des fissions du cœur.

Pour la suite, seuls ces noyaux seront considérés pour la description de l'évolution des concentrations des produits de fission en irradiation.

L'étude a aussi été réalisée pour des temps d'irradiation plus long afin de couvrir la gamme de temps d'irradiation des assemblages PHENIX. Peu de variations sont observées sur les répartitions présentées.

### b) Evolution de la concentration des noyaux lourds sélectionnés pendant l'irradiation

L'étude d'une irradiation d'un assemblage fissile de type cœur interne de PHENIX a été conservée et étendue à des paliers d'irradiation de 1 an, 3 ans et 5 ans. Le module INVERSION du formulaire DARWIN permet de connaître la provenance des noyaux étudiés. Le **tableau II.2** présente ces provenances avec les voies de formation associées et le pourcentage de chaque contribution.

Noyaux	Réactions	1 an	3 ans	5 ans
$^{239}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$ initial	87,95	66,62	49,26
	$^{238}\text{U}$ (n, $\gamma$ ) $^{239}\text{U}$ ( $\beta^-$ , ) $^{239}\text{Np}$ ( $\beta^-$ , ) $^{239}\text{Pu}$	12,04	33,34	50,66
	$^{238}\text{Pu}$ (n, $\gamma$ ) $^{239}\text{Pu}$	0,02	0,04	0,05
$^{240}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$ initial	88,61	72,13	60,57



## PARTIE II

	$^{239}\text{Pu} (n,\gamma) ^{240}\text{Pu}$	10,65	22,90	28,39
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (\beta^-, ) ^{239}\text{Pu} (n,\gamma) ^{240}\text{Pu}$	0,69	4,82	10,80
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (n,\gamma) ^{240\text{m}}\text{Np} (\beta^-, ) ^{240}\text{Pu}$	0,03	0,08	0,13
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (n,\gamma) ^{240\text{f}}\text{Np} (\beta^-, ) ^{240}\text{Pu}$	0,02	0,05	0,08
	$^{238}\text{Pu} (n,\gamma) ^{239}\text{Pu} (n,\gamma) ^{240}\text{Pu}$			0,01
<b><math>^{241}\text{Pu}</math></b>	$^{241}\text{Pu}$ initial	67,14	31,40	15,31
	$^{240}\text{Pu} (n,\gamma) ^{241}\text{Pu}$	30,79	56,39	61,01
	$^{239}\text{Pu} (n,\gamma) ^{240}\text{Pu} (n,\gamma) ^{241}\text{Pu}$	1,97	10,63	18,68
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (\beta^-, ) ^{239}\text{Pu} (n,\gamma) ^{240}\text{Pu} (n,\gamma) ^{241}\text{Pu}$		1,52	4,86
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (n,\gamma) ^{240\text{m}}\text{Np} (\beta^-, ) ^{240}\text{Pu} (n,\gamma) ^{241}\text{Pu}$		0,04	0,07
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (n,\gamma) ^{240\text{f}}\text{Np} (\beta^-, ) ^{240}\text{Pu} (n,\gamma) ^{241}\text{Pu}$		0,02	0,04
<b><math>^{235}\text{U}</math></b>	$^{235}\text{U}$ initial	99,81	99,27	98,43
	$^{239}\text{Pu} (\alpha, ) ^{235\text{m}}\text{U} (\gamma, ) ^{235\text{f}}\text{U}$	0,18	0,54	0,90
	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (\beta^-, ) ^{239}\text{Pu} (\alpha, ) ^{235\text{m}}\text{U} (\gamma, ) ^{235}\text{U}$		0,12	0,39
	$^{238}\text{Pu} (\alpha, ) ^{234}\text{U} (n,\gamma) ^{235\text{f}}\text{U}$		0,02	0,08
	$^{238}\text{Pu} (\alpha, ) ^{234}\text{U} (n,\gamma) ^{235\text{m}}\text{U} (\gamma, ) ^{235\text{f}}\text{U}$		0,02	0,07
	$^{241}\text{Am} (n,\gamma) ^{242\text{f}}\text{Am} (\beta^-, ) ^{242}\text{Cm} (\alpha, ) ^{238}\text{Pu} (\alpha, ) ^{234}\text{U} (n,\gamma) ^{235\text{f}}\text{U}$			0,04
<b><math>^{238}\text{U}</math></b>	$^{238}\text{U}$ initial	100	100	100

Tab. II.2 : Evolution des noyaux lourds pendant l'irradiation dans un assemblage fissile (m : métastable, f : fondamental).

De ce tableau, il est possible de tirer des conclusions sur les noyaux nécessaires à une description correcte de l'évolution de la concentration des  $^{235,238}\text{U}$  et  $^{239,240,241}\text{Pu}$ .

$^{235}\text{U}$  possède six voies de formation dont une correspond aux noyaux d' $^{235}\text{U}$  initiaux n'ayant pas subi de réaction. Cette dernière voie de formation correspond à plus de 99 % des voies de formation des noyaux d' $^{235}\text{U}$  présents après un et trois ans d'irradiation et plus de 98 % après cinq ans d'irradiation. La deuxième voie de formation la plus importante fait intervenir la décroissance alpha du  $^{239}\text{Pu}$ . Deux voies de formation contiennent cette réaction et la somme de leur contribution à la formation des noyaux d' $^{235}\text{U}$  est négligeable puisqu'elle dépasse à peine les 1 % après cinq ans d'irradiation. Les autres voies de formation sont encore plus négligeables. En conséquence,  $^{235}\text{U}$  et ses réactions nucléaires s'auto suffisent pour la description de sa formation sous irradiation dans un assemblage fissile.

## PARTIE II

Concernant l' $^{238}\text{U}$ , toutes les voies de formation autres que celle décrite par les noyaux d' $^{238}\text{U}$  initiaux n'ayant pas subi de réaction sont négligeables.

Les noyaux des  $^{239,240,241}\text{Pu}$  proviennent tous de la capture neutronique de l' $^{238}\text{U}$ , de la décroissance de l' $^{239}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Np}$ , puis de la capture neutronique successive des isotopes du plutonium. L'impact des  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{240,240\text{m}}\text{Np}$  est clairement négligeable.

En conséquence, les seuls noyaux à ajouter sont l' $^{239}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Np}$ . La modélisation de la chaîne de réaction est présentée sur la **figure II.15**.

Une analyse similaire a été réalisée pour les assemblages fertiles (voir **tableau II.3**). Dans ce cas, elle est encore plus simple puisqu'une seule voie de formation est nécessaire pour chacun des noyaux. Seuls les  $^{239}\text{U}$  et  $^{239}\text{Np}$  seront ajoutés pour une bonne description du  $^{239}\text{Pu}$ . La modélisation de la chaîne de réaction associée est présentée sur la **figure II.15**.

Noyaux	Réactions	1 an	3ans	5 ans
$^{239}\text{Pu}$	$^{238}\text{U} (n,\gamma) ^{239}\text{U} (\beta^-, ) ^{239}\text{Np} (\beta^-, ) ^{239}\text{Pu}$	100	100	100
$^{235}\text{U}$	$^{235}\text{U}$ initial	100	100	100
$^{238}\text{U}$	$^{238}\text{U}$ initial	100	100	100

Tab II.3 : Evolution des noyaux lourds pendant l'irradiation dans un assemblage fertile.

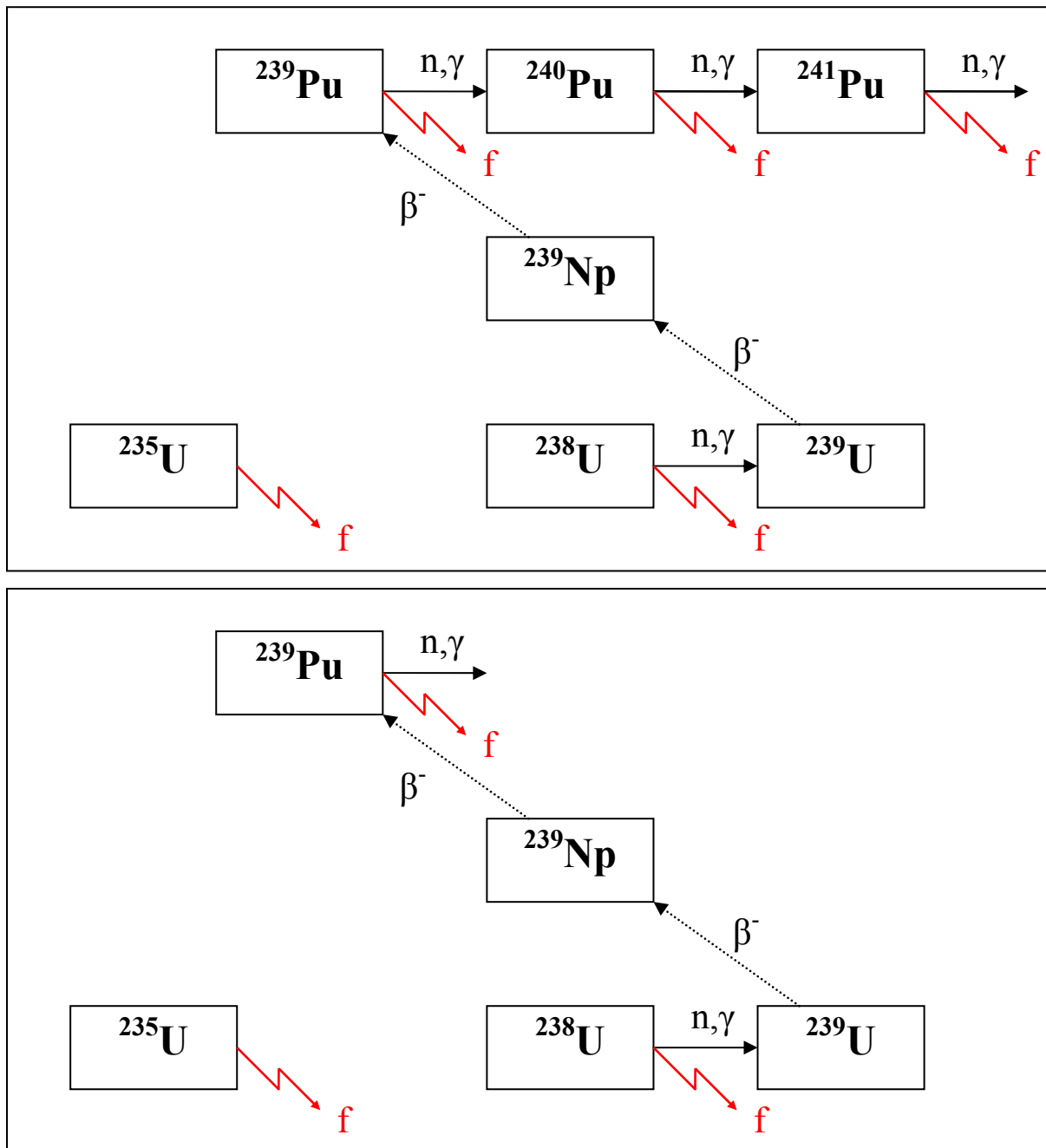


Fig. II.15 : Modélisation de la chaîne de réaction des noyaux lourds pour la modélisation de l'évolution des produits de fission sous irradiation dans un assemblage fissile (haut) et fertile (bas).

## 2) Création des chaînes de produits de fission

Les noyaux lourds et les produits de fission contribuant à la puissance résiduelle sont maintenant connus et il est essentiel de modéliser correctement leur évolution et leurs voies de formation en irradiation et en refroidissement. Une première approche serait de ne prendre en considération que les noyaux contribuant à la puissance résiduelle (voir **figure II.16**). Cependant, cela peut poser un problème de biais de calcul de la concentration des noyaux comme expliqué ci-après.

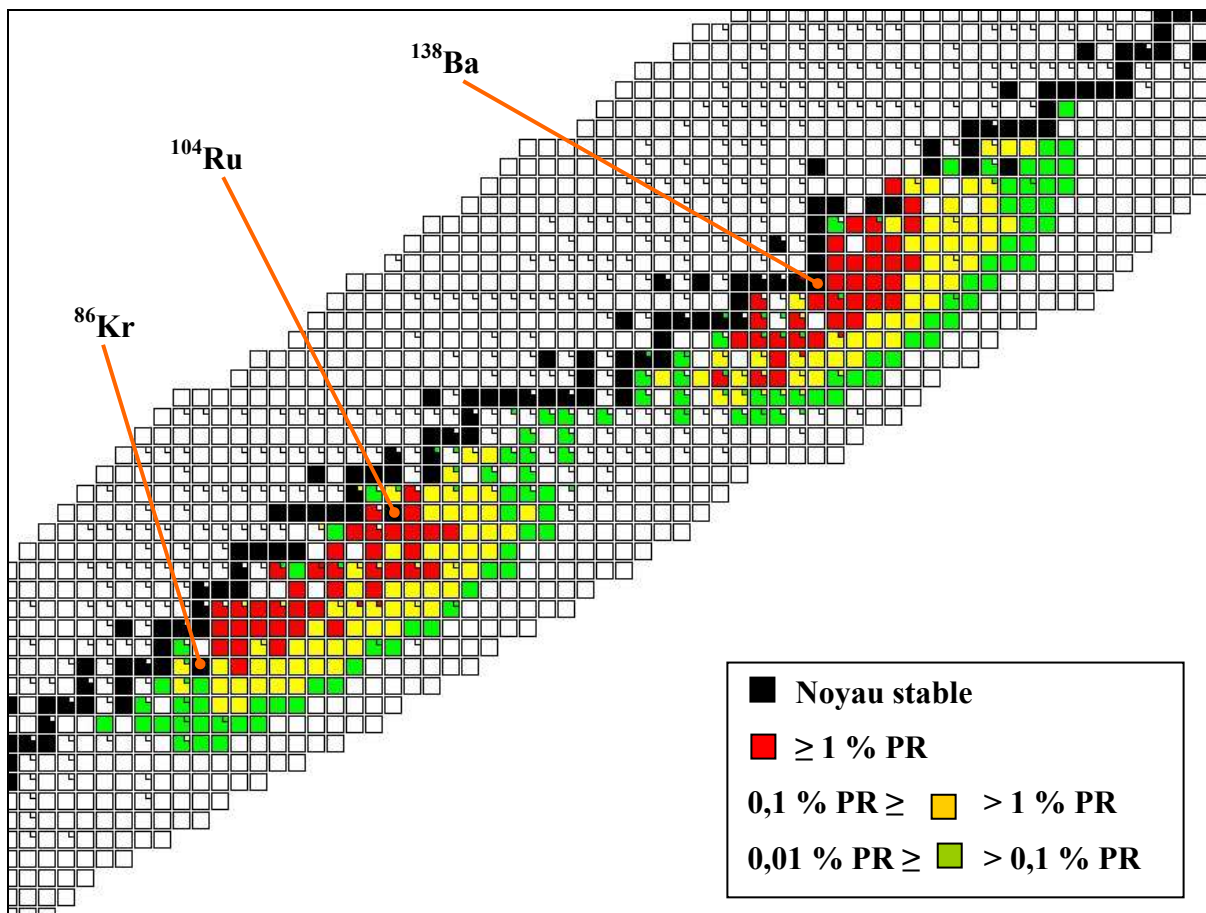


Fig. II.16 : Répartition des 369 noyaux contribuant à la puissance résiduelle dans un assemblage fissile irradié un an (Les noyaux mentionnés ne sont présents que pour aider le lecteur à visualiser l'endroit de la courbe des isotopes représentée).

### a) Etablissement du problème de modélisation de l'évolution des concentrations

Pour chaque nombre de masse A des produits de fission sélectionnés, un noyau « tête de chaîne » doit être défini pour lequel sa concentration sera calculée en utilisant son rendement

de fission cumulé et non son rendement indépendant. La raison de ce changement est de ne pas perdre de matière, c'est-à-dire que la somme des rendements de fission utilisés pour calculer les concentrations des noyaux ayant le même nombre de masse A doit être égal au rendement de la chaîne :

$$Y_{NL \rightarrow TC}^c + \sum_j Y_{NL \rightarrow j}^i = Y_{NL \rightarrow A}^{ch}$$

Avec :

j les noyaux de la chaîne de nombre de masse A,

NL un noyau lourd qui fissionne vers les noyaux j,

TC le produit de fission désigné comme étant la tête de chaîne,

$Y_{NL \rightarrow j}^i$  : le rendement de fission indépendant du noyau lourd NL vers le noyau j,

$Y_{NL \rightarrow TC}^c$  : le rendement de fission cumulé du noyau lourd NL vers le noyau tête de chaîne TC,

$Y_{NL \rightarrow A}^{ch}$  : le rendement de fission de la chaîne de nombre de masse A dû au noyau lourd NL.

Cependant, le rendement de fission cumulé étant plus grand que le rendement de fission indépendant, la concentration du noyau tête de chaîne peut être supérieure à ce qu'elle devrait être. L'exemple suivant illustre ce problème. Les noyaux A et B sont des produits de fission des noyaux lourds F. A est le noyau le plus instable pouvant être produit par les noyaux lourds F, mais est également le père du noyau B (voir **figure II.17**). Enfin, les noyaux lourds F ont une concentration suffisamment grande pour que celle-ci ne soit impactée que de façon négligeable par l'irradiation, de sorte que la concentration des noyaux lourds peut être supposée constante.

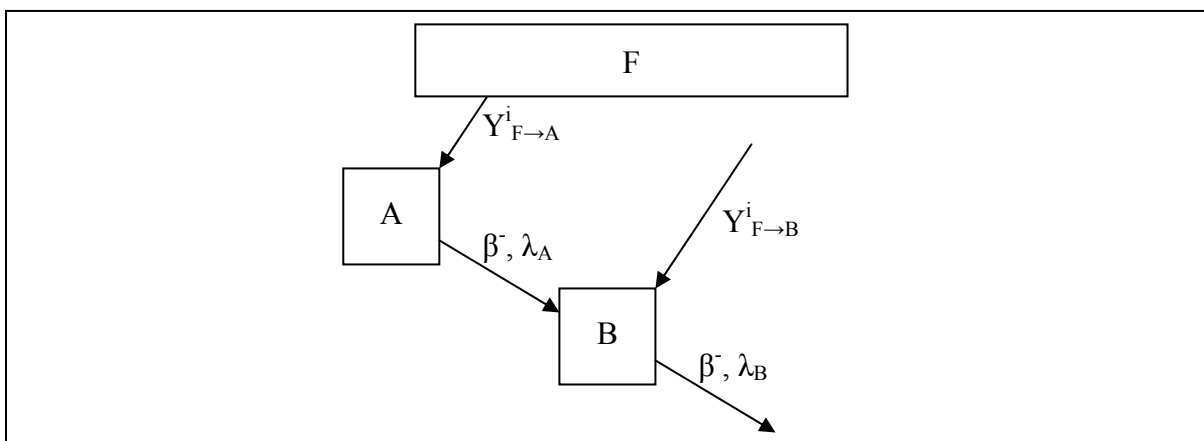


Fig. II.17 : Exemple d'une décroissance de A vers B produits par F sous irradiation.

## PARTIE II

L'évolution de la concentration des noyaux A et B peut être posée mathématiquement de la façon suivante :

$$\begin{cases} \frac{dN_A}{dt} = -\lambda_A N_A + \sum_F Y_{F \rightarrow A}^i \sigma_F^f \phi N_F \\ \frac{dN_B}{dt} = -\lambda_B N_B + \lambda_A N_A + \sum_F Y_{F \rightarrow B}^i \sigma_F^f \phi N_F \\ N_A(0) = N_B(0) = 0 \end{cases}$$

Alors, si A est considéré comme étant la tête de chaîne, les solutions sont les suivantes :

$$\begin{aligned} N_A(t) &= \frac{\sum_F Y_{F \rightarrow A}^i \sigma_F^f \phi N_F}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_B t}) \\ N_B(t) &= \frac{\sum_F (Y_{F \rightarrow A}^i + Y_{F \rightarrow B}^i) \sigma_F^f \phi N_F}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) + \frac{\sum_F Y_{F \rightarrow A}^i \sigma_F^f \phi N_F}{\lambda_B - \lambda_A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \end{aligned}$$

Si B est considéré comme étant la tête de chaîne, alors il ne reste que le premier terme dans la solution de la concentration du noyau B ci-dessus, et la solution devient :

$$\begin{aligned} N_A(t) &= 0 \\ N_B(t) &= \frac{\sum_F Y_{F \rightarrow B}^i \sigma_F^f \phi N_F}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) \end{aligned}$$

Le second terme de la solution de la concentration du noyau B, dans le cas où le noyau A est la tête de chaîne, corrige la concentration du noyau B en prenant en compte la décroissance du noyau A vers le noyau B. La question est de savoir si ce terme est négligeable ou pas, afin de quantifier un éventuel biais.

A titre d'exemple, la **figure II.18** présente ce biais dans le cas où :

$$Y_{F \rightarrow A}^i = 0,1 ; Y_{F \rightarrow B}^i = 0,1$$

$$T_{1/2A} = 5 \text{ s} ; T_{1/2B} = 10 \text{ s.}$$

$$N_F \sigma_F^f \Phi = 1000$$

## PARTIE II

Un biais conséquent peut donc apparaître. D'après les équations, ce biais devient négligeable quand le second terme devient négligeable par rapport au premier terme. Autrement dit, l'approximation qui consiste à prendre B comme tête de chaîne et à considérer son rendement cumulé est valable à partir d'un temps d'irradiation  $t_{approx}$  à partir duquel les noyaux A et B sont saturés. La saturation est considérée atteinte pour un temps d'irradiation supérieur à 5 fois la période la plus longue entre le noyau A et le noyau B :

$$t_{approx} = 5 \max(T_A, T_B)$$

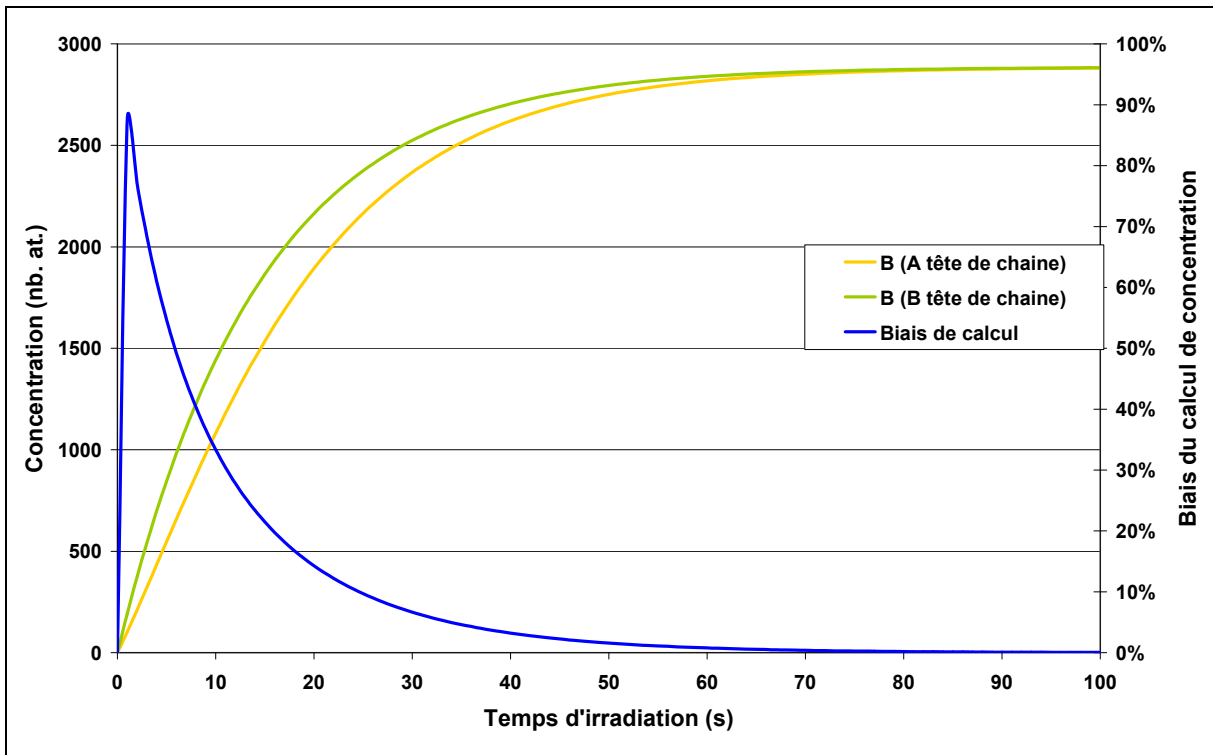


Fig. II.18 : Représentation d'un biais de calcul sur la concentration d'un noyau B selon que le noyau A (courbe jaune) ou le noyau B (courbe verte) est pris comme tête de chaîne.

### b) Première solution au problème du biais de calcul des concentrations

Une possibilité pour contourner le problème est de considérer que, l'objectif étant de pouvoir répondre à des problématiques dans une gamme de temps de refroidissement située entre 1 seconde et  $10^9$  secondes, les noyaux les plus instables à modéliser sont ceux dont la période est inférieure à 0,2 seconde. De cette façon, un temps d'irradiation de 5 fois la période

(permettant de saturer le noyau concerné par le rendement cumulé de fission) se situe autour de la seconde.

Cependant, le problème de ce critère ( $T_{1/2} < 0,2$  s) est qu'il implique une modélisation d'un nombre plus important de noyaux, comme le montre la **figure II.19** (+ 94 noyaux). L'effet est assez faible sur les produits de fission légers, mais il est plus important sur les produits de fission lourds et en particulier sur les masses les plus lourdes.

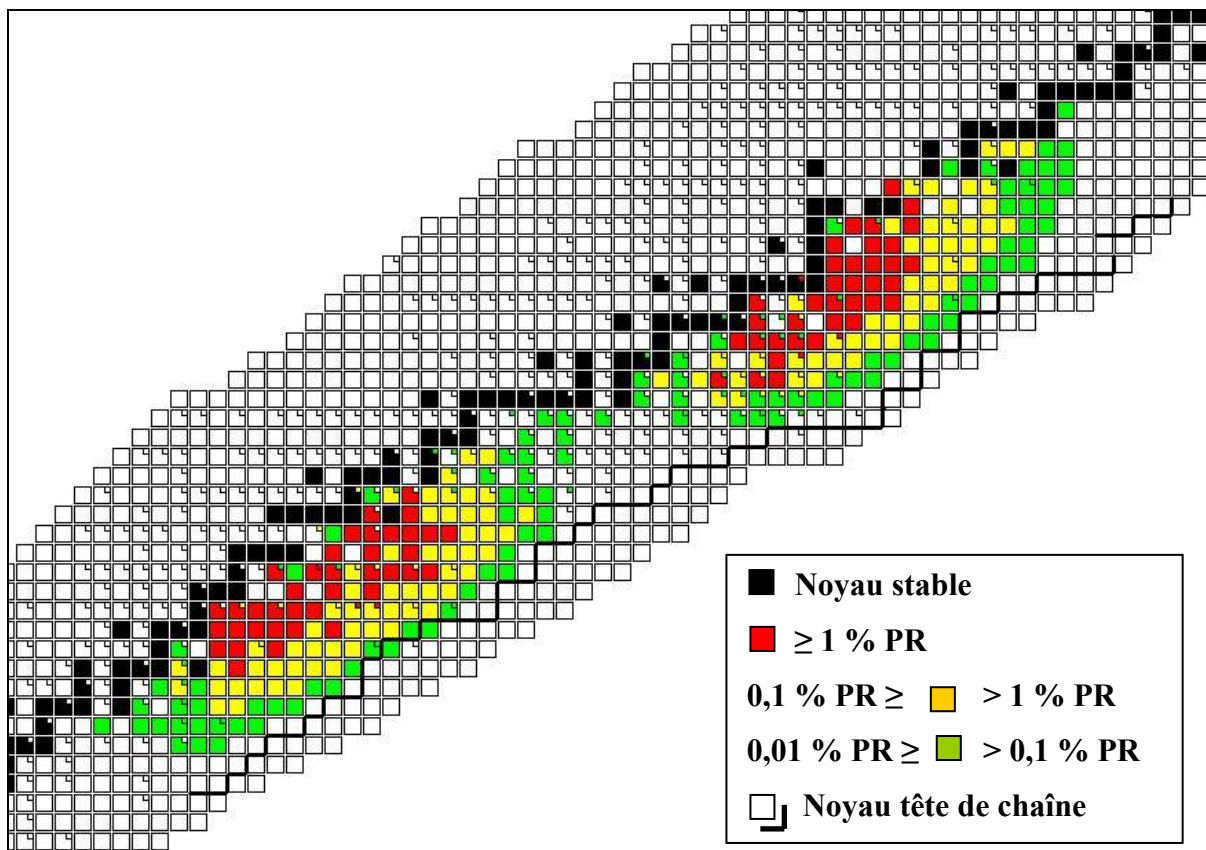


Fig. II.19 : Représentation du critère de sélection des noyaux « tête de chaîne » sur le schéma des noyaux contribuant à la puissance résiduelle.

### c) Deuxième solution au problème du biais de calcul des concentrations

D'après la **figure II.18**, plus le temps d'irradiation est court, plus le biais de calcul est grand. Le cas limite, et en conséquence le plus problématique puisque le biais sera le plus grand possible, est celui d'une fission élémentaire. Concernant le temps de décroissance, le biais est le plus important au début du refroidissement. L'étude doit donc être réalisée au moment de la fission.



## PARTIE II

D'après les conditions énoncées (fission élémentaire et temps de refroidissement nul), les concentrations des noyaux A et B sont :

A tête de chaîne :

$$\begin{aligned}A(0) &= Y_{F \rightarrow A}^i \\ B(0) &= Y_{F \rightarrow B}^i\end{aligned}$$

B tête de chaîne :

$$B_{\text{tête de chaîne}}(0) = Y_{F \rightarrow A}^i + Y_{F \rightarrow B}^i = Y_{F \rightarrow B}^c$$

L'écart maximal entre la concentration de B, supposant A tête de chaîne, et la concentration de B tête de chaîne est égal à :

$$\frac{B_{\text{tête de chaîne}}(0) - B(0)}{B(0)} = \frac{Y_{F \rightarrow A}^i}{Y_{F \rightarrow B}^i}$$

Un nouveau critère peut être construit sur le biais maximum autorisé de la concentration du noyau « tête de chaîne » et en conséquence sur le rapport entre le rendement indépendant de fission du noyau « tête de chaîne » et le rendement indépendant de fission de son père.

Ce critère est arbitrairement fixé à 1 %, c'est-à-dire que plus de 99 % de la source de production du produit de fission doit être un noyau lourd, ou dit encore autrement, le rendement indépendant de fission doit être égal à plus de 99 % du rendement cumulé de fission.

L'étude va être menée sur les rendements indépendants de fission sous spectre rapide du  $^{239}\text{Pu}$  puisque c'est le noyau lourd qui représente la plus grande majorité des fissions. Le critère précédent permet d'obtenir la ligne de démarcation violette de la **figure II.20**. L'utilisation de celui-ci ajoute 48 noyaux aux 369 noyaux nécessaires à la description de la puissance résiduelle.

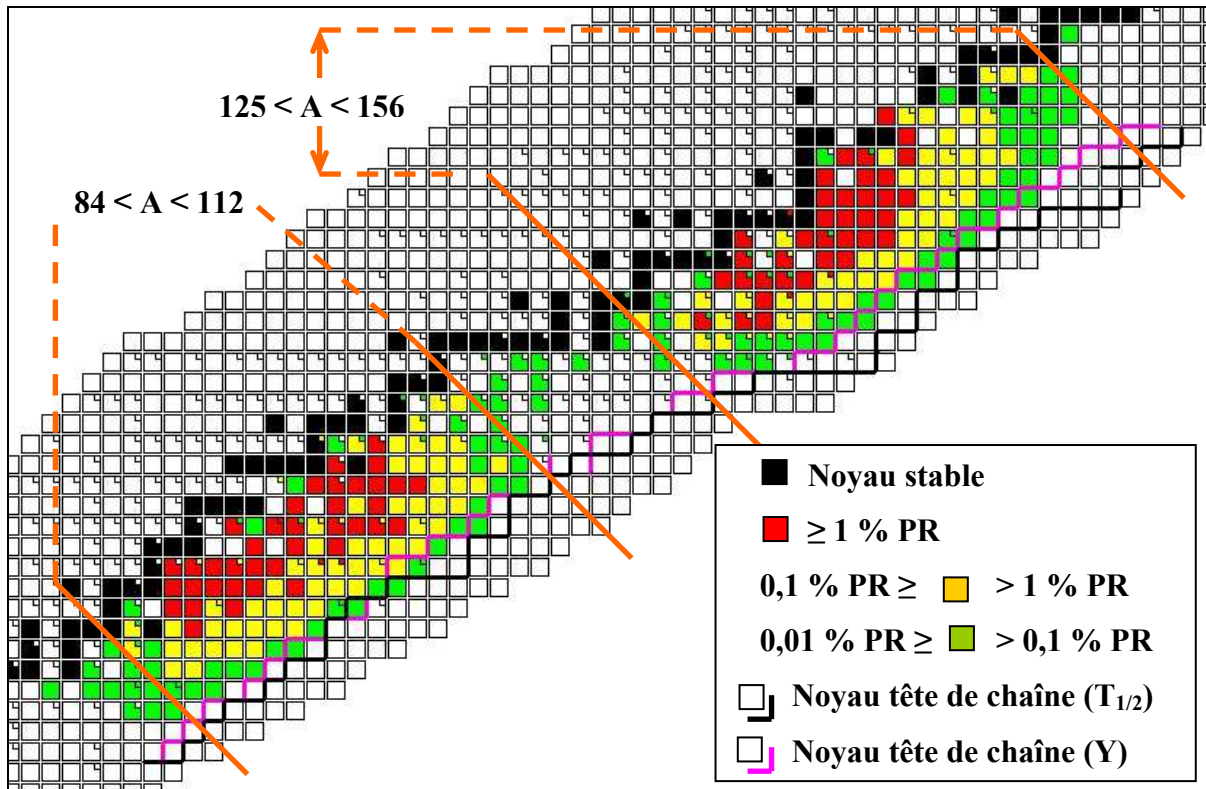


Fig. II.20 : Sélection des noyaux à modéliser suivant le nouveau critère.

#### d) Conclusion sur la création des chaînes des produits de fission

Tout en permettant une modélisation fine des noyaux contribuant à la puissance résiduelle, le critère proposé dans la deuxième solution (rendements) nécessite de prendre en compte moins de noyaux que le critère proposé dans la première solution (période) d'après la **figure II.20**. C'est donc le critère sur les rendements qui est conservé. Ce sont donc 48 noyaux qui sont ajoutés au 369 précédents (les noyaux contribuant à la puissance résiduelle mais qui ne remplissent pas le critère sur les rendements sont bien entendu conservés).

Un critère supplémentaire est à considérer. Seules les chaînes ayant des noyaux contribuant à plus de 0,1 % de la puissance résiduelle seront modélisées. Pour les autres, une incertitude arbitraire sera ajoutée sur la concentration (voir paragraphe II.2). Ainsi, seules les chaînes de masses comprises entre 84 et 112 et entre 125 et 156 sont modélisées ce qui permet de négliger, en première approche, 27 noyaux.

De plus, cela permet de modéliser la chaîne des produits de fission en deux chaînes plus petites : une pour les produits de fission légers ( $A = 84$  à  $112$ ) et une pour les produits de

fission lourds ( $A = 125$  à  $156$ ). Cela est intéressant car les données nucléaires des produits de fission lourds n'ont aucun impact sur les concentrations des produits de fission légers. Il aurait même été intéressant de pouvoir réaliser une chaîne d'évolution pour chaque nombre de masse car cela aurait rendu le calcul numérique plus simple, mais cela n'est pas possible car certaines masses sont couplées à cause des réactions de décroissance  $\beta^-n$ , et des sections de capture des produits de fission.

## C – Création des chaînes de réactions pour les noyaux lourds

Une chaîne de noyaux est à modéliser dans le but d'obtenir l'incertitude des 18 noyaux lourds ayant une contribution non négligeable à la puissance résiduelle durant la gamme de temps de refroidissement  $[1 ; 10^9]$  secondes.

Les résultats de cette partie ont été obtenus lors de l'encadrement technique du stage de 6 semaines d'Alexandre RAMON durant ma deuxième année de thèse.

Dans la partie I chapitre 2 I.A.2, les noyaux suivants ont été mis en évidence :  $^{237,239}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,240m}\text{Np}$ ,  $^{238,239,240,241,242,243}\text{Pu}$ ,  $^{241,242,243}\text{Am}$ ,  $^{242,243,244}\text{Cm}$ . A ceux-ci, il est nécessaire d'ajouter les noyaux ayant une concentration initiale non-nulle :  $^{235,238}\text{U}$ . Un noyau très important à ajouter est  $^{242m}\text{Am}$  qui provient de la section de capture de  $^{241}\text{Am}$ . Ce noyau a un impact sur la concentration de  $^{243}\text{Am}$ . Le  $^{237}\text{Np}$  provient directement de la décroissance de  $^{237}\text{U}$  et permet de produire le  $^{238}\text{Np}$ . Enfin, dans l'expérience TRAPU (voir la partie I) les noyaux  $^{234}\text{U}$  et  $^{245}\text{Cm}$  sont analysés. Ils sont donc ajoutés à la liste.

La liste des réactions à modéliser entre ces noyaux a été obtenue par essais successifs et comparaison entre la modélisation de la chaîne simplifiée et le formulaire DARWIN.

La **figure II.21** présente la liste des noyaux à traiter ainsi que le schéma de leurs réactions.

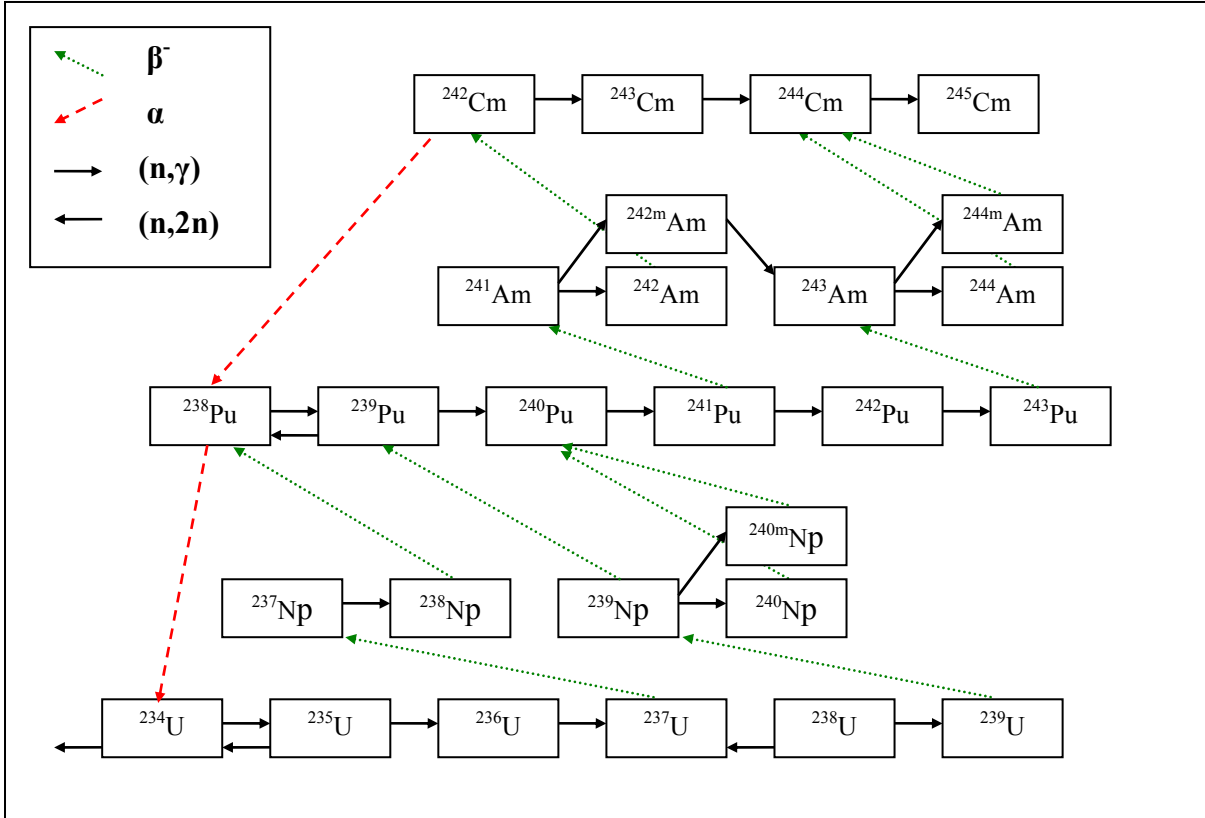


Fig. II.21 : Schéma de la chaîne de réactions des noyaux lourds.

## II – Etude des réactions nécessaires à la modélisation fine de la puissance résiduelle

Un effet  $\alpha$ , jusqu'à présent, toujours été négligé dans les différentes références traitant de la propagation des incertitudes sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à eau légère : l'effet de capture des produits de fission. Effectivement, les données nucléaires utilisées dans ces études étaient associées à des incertitudes très fortes, et les temps de refroidissement étudiés étaient trop courts pour que l'effet de capture soit un paramètre important du calcul de la puissance résiduelle (voir partie I). De plus, cet effet est encore plus faible dans les RNR car les sections efficaces de capture radiative (et plus globalement d'absorption) diminuent avec l'augmentation de l'énergie des neutrons (voir la partie I paragraphe I.D). Au maximum, il représente 4 % de la puissance résiduelle à  $10^8$  secondes (3 ans) dans un RNR (voir **figure II.22**).

Cependant, quatre arguments plaident en faveur d'une étude de cet effet. Tout d'abord, si son impact reste limité sur la valeur de la puissance résiduelle, il n'empêche que les incertitudes

des sections efficaces de capture des produits de fission sont grandes ce qui peut avoir un impact non négligeable sur l'incertitude de la puissance résiduelle. De plus, la précision des données nucléaires de décroissance (période et énergie) a été très fortement améliorée par rapport aux études précédentes qui négligeaient cet effet, ce qui rend l'impact de l'effet de capture sur l'incertitude de la puissance résiduelle plus important. Ensuite, TASAKA [6] a montré que cet effet peut devenir important selon les conditions d'irradiation (augmentation de l'impact avec une augmentation du taux de combustion ou du niveau du flux neutronique) ce qui oblige à revoir l'impact de l'effet de capture sur la puissance résiduelle dans le cas étudié dans cette thèse (voir **figure II.22**). Enfin, un dernier argument pragmatique, cet effet de capture est limité à quelques sections efficaces. Le nombre de paramètres étudiés étant important, l'étude de quelques sections supplémentaires n'allongera pas de façon significative les temps de calcul.

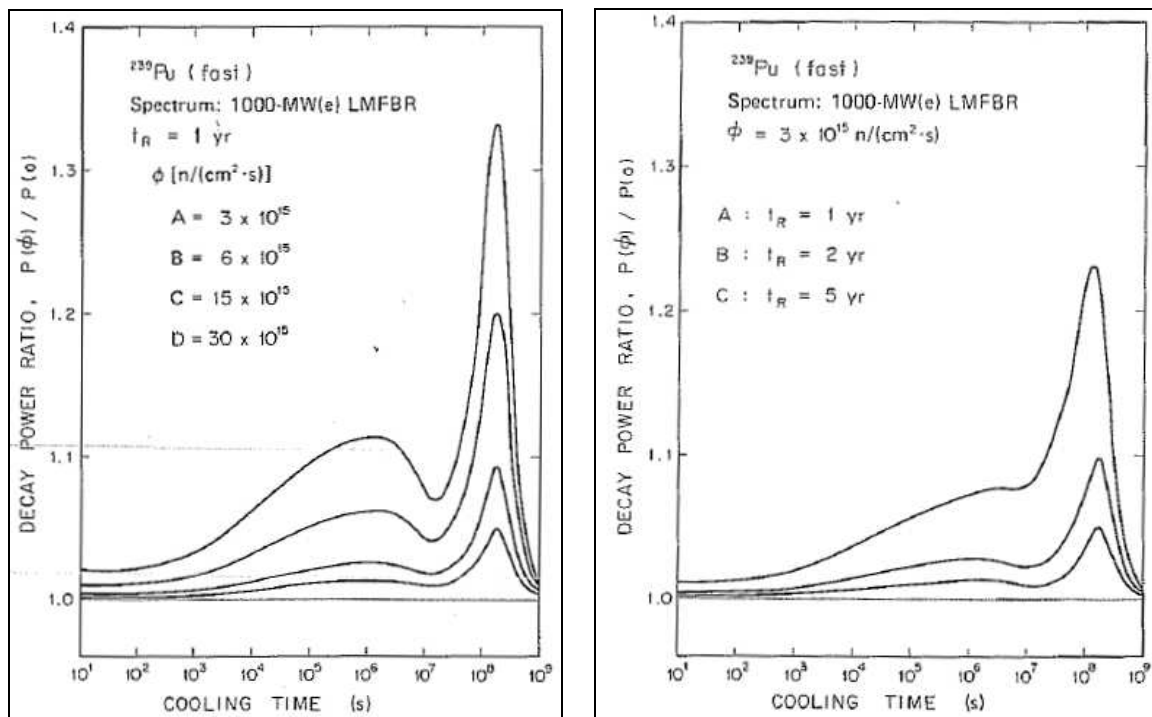


Fig. II.22 : Variation de l'effet de capture suivant le niveau de flux neutronique et le temps d'irradiation ( $\sim$  taux de combustion) [6].

## A – Etude de l'effet de capture sur la puissance résiduelle dégagée par un échantillon pur de $^{239}\text{Pu}$ irradié

L'objectif de ce chapitre est de mettre en évidence les noyaux responsables de l'effet de capture. Pour cela, il a été décidé d'étudier un échantillon pur de  $^{239}\text{Pu}$  plutôt qu'un assemblage du réacteur PHENIX. Plusieurs raisons accréditent ce choix. Premièrement, l'étude de TASAKA est basée sur des calculs à partir d'échantillons purs. Pour pouvoir comparer les résultats de cette étude à la sienne, il est obligatoire de se placer dans des conditions similaires. Deuxièmement, il est préférable de ne pas combiner plusieurs effets : les noyaux lourds ne produisent pas les mêmes noyaux avec les mêmes quantités. Troisièmement, il a été montré au chapitre 2 paragraphe I.B.1 que le  $^{239}\text{Pu}$  est le noyau produisant le plus de fission dans les assemblages fissiles et fertiles. Il est normal de choisir ce noyau pour réaliser l'étude.

### 1) Evolution de l'impact de cet effet sur la puissance résiduelle en fonction du temps de refroidissement

Cette étude est réalisée de la manière suivante : deux calculs sont réalisés avec le formulaire DARWIN. Le premier est un calcul de référence. Le deuxième est un calcul pour lequel toutes les sections efficaces de capture des produits de fission sont placées à 0. L'échantillon de  $^{239}\text{Pu}$  pur est irradié pendant 1 an sous un flux de  $3,0 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2/\text{s}$  avec un spectre rapide représentatif du cœur interne de PHENIX.

La **figure II.23** présente le rapport de la puissance résiduelle de référence par rapport à la puissance résiduelle calculée en négligeant les sections efficaces de capture des produits de fission.

La signature de l'effet de capture des produits de fission sur la puissance résiduelle est la présence de deux pics : un très piqué à  $10^8$  secondes (3 ans) et un plus large à  $10^6$  secondes (11 jours). Le maximum de puissance résiduelle apporté par cet effet est de 4,0 % à  $1,5 \cdot 10^8$  secondes (4,75 ans). Les résultats obtenus sont très similaires à ceux de TASAKA. La différence pourrait provenir d'une différence dans les sections efficaces ou dans les spectres utilisés.

Le chapitre suivant va permettre d'identifier les noyaux contribuant à ces pics et d'étudier l'impact des paramètres d'irradiation.

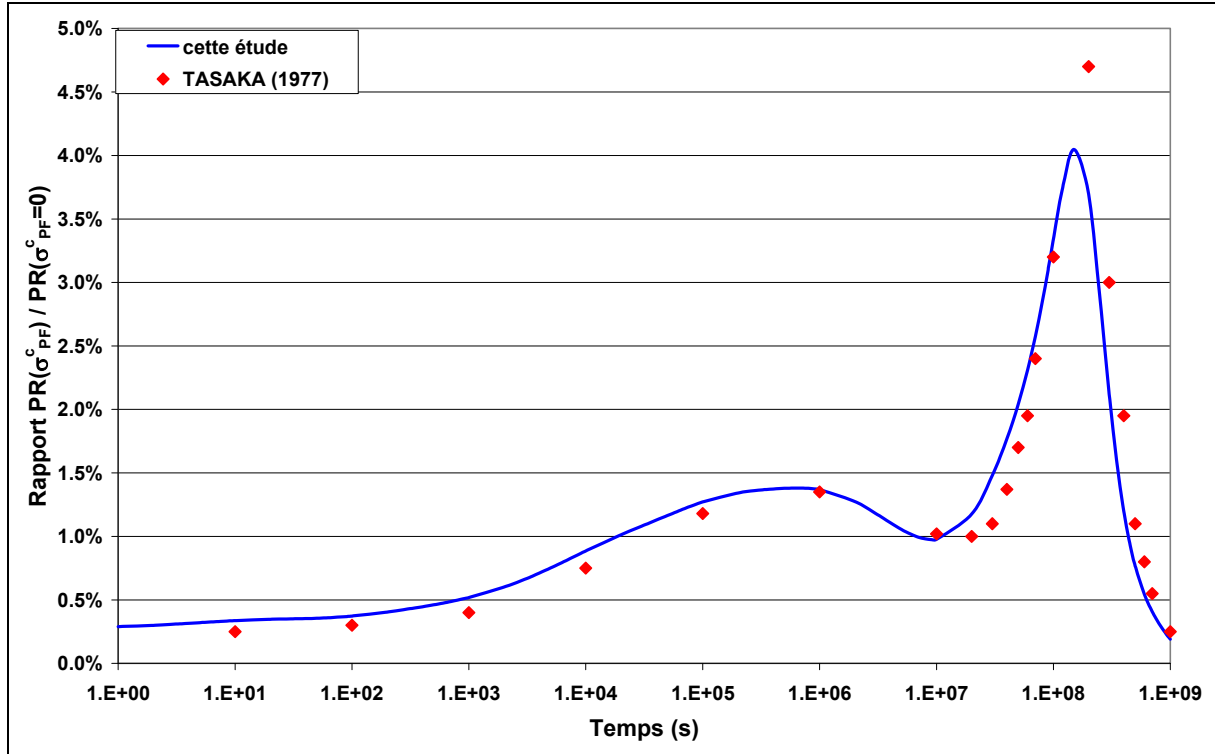


Fig. II.23 : Impact des sections efficaces de capture des produits de fission sur la puissance résiduelle.

## 2) Caractérisation de la différence de puissance résiduelle lors de la prise en compte de l'effet de capture des produits de fission

Il est intéressant de connaître les noyaux responsables de cet apport de puissance résiduelle. Autant les noyaux stables que les noyaux instables peuvent capturer un neutron et produire un noyau qui va participer significativement à l'effet de capture. Pour les noyaux instables, leur contribution dépendra fortement de la compétition entre leur section efficace de capture et la décroissance radioactive. Si un noyau décroît très rapidement, le nombre de capture de neutrons réalisé par le noyau sera faible. La **figure II.24** présente les noyaux instables pour lesquels le rapport du taux de capture sur le taux de disparition (taux de capture plus taux de décroissance) est suffisamment important pour que le noyau soit susceptible d'avoir un impact sur l'effet de capture.

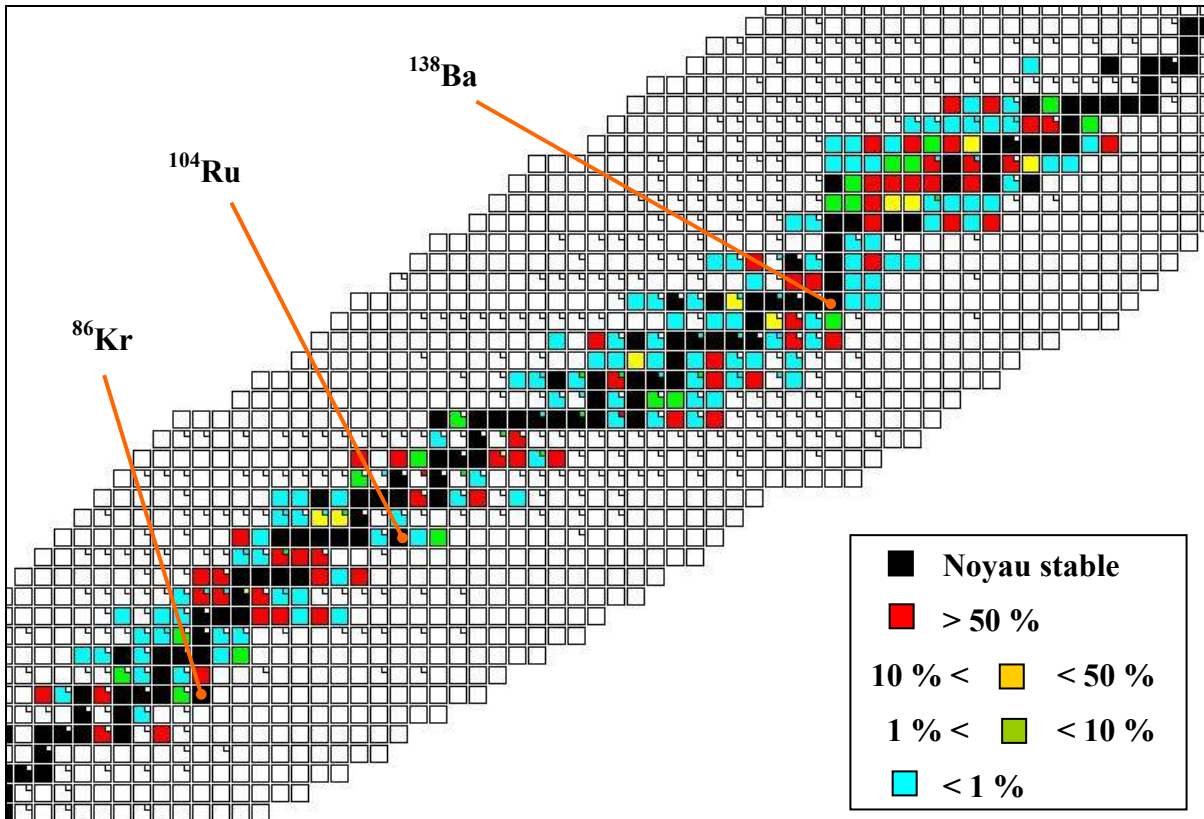


Fig. II.24 : Rapport du taux de capture sur le taux de disparition (données JEFF3.1.1).

D'après cette figure couplée à la **figure II.16** du chapitre 2 paragraphe I.B.2, peu de noyaux seront concernés car beaucoup des noyaux ayant un rapport important ne participent pas à la puissance résiduelle.

TASAKA montre qu'il est possible d'isoler les noyaux contribuant à cet effet en calculant le taux de contribution par noyau. Il est défini comme le rapport de la différence de puissance résiduelle émise par le noyau étudié avec la différence de puissance résiduelle totale. Ce taux peut être supérieur à 100 % puisque certains noyaux auront un effet positif et d'autres un effet négatif sur la puissance résiduelle.

$$TC_i = \frac{PR_i(\sigma_{PF}^c) - PR_i(\sigma_{PF}^c = 0)}{PR_{TOT}(\sigma_{PF}^c) - PR_{TOT}(\sigma_{PF}^c = 0)}$$

Avec :

$TC_i$  : le taux de contribution du noyau  $i$ ,



## PARTIE II

$PR_i(\sigma_{PF}^c)$  : la puissance résiduelle due au noyau  $i$  avec prise en compte des sections de capture des produits de fission,

$PR_i(\sigma_{PF}^c = 0)$  : la puissance résiduelle due au noyau  $i$  sans prise en compte des sections de capture des produits de fission,

$PR_{TOT}$  : la puissance résiduelle totale avec ou sans prise en compte de l'effet de capture des produits de fission.

Le **tableau II.4** ci-dessous regroupe les résultats pour les noyaux ayant le plus d'impact. Ils sont similaires à ceux de TASAKA mis à part quelques noyaux supplémentaires.

Si, de plus, ces contributions sont multipliées par l'écart relatif entre la puissance résiduelle totale avec sections de capture et sans section de capture, alors il apparaît que les noyaux bénéficiant de l'effet de capture de façon importante pour la puissance résiduelle sont les  $^{134,136}\text{Cs}$ , les  $^{148,148m}\text{Pm}$  et  $^{154}\text{Eu}$  (voir **figure II.25**). En particulier, le second pic à  $10^8$  secondes (3 ans) est majoritairement dû au  $^{134}\text{Cs}$ , très légèrement à  $^{154}\text{Eu}$ , et certains noyaux ( $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{137m}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Pr}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ) qui contribuent à la puissance résiduelle à ce temps de refroidissement ont un effet négatif car la capture neutronique a diminué leur concentration et en conséquence leur taux macroscopique de décroissance. Le premier pic à  $10^6$  secondes (11 jours) est dû principalement à l'action cumulée des  $^{136}\text{Cs}$  et  $^{148m}\text{Pm}$ .

Ces noyaux ( $^{134,136}\text{Cs}$ ,  $^{148,148m}\text{Pm}$  et  $^{154}\text{Eu}$ ), sans l'effet de capture, n'interviennent pas dans la puissance résiduelle pour deux raisons. Premièrement, leurs rendements de fission, quel que soit le noyau lourd, sont très faibles. Deuxièmement, ils ne peuvent pas être créés par décroissance radioactive car un de leur noyau père vient faire écran : le père est soit stable, soit émetteur double bêta (la décroissance  $\beta^-$  de certains noyaux est interdite pour des raisons énergétiques (réaction endothermique) ou de règle de sélection de spin. Le noyau décroît donc suivant un autre mode, l'émission de deux particules bêta [7], décroissance uniquement possible dans les noyaux pair-pair. L'ordre de grandeur moyen des périodes de ces noyaux est de  $10^{20}$  ans).

## PARTIE II

Taux (%)	Pour le cas <sup>239</sup> Pu pur									
Noyaux/ Temps (s)	10 <sup>0</sup>	10 <sup>1</sup>	10 <sup>2</sup>	10 <sup>3</sup>	10 <sup>4</sup>	10 <sup>5</sup>	10 <sup>6</sup>	10 <sup>7</sup>	10 <sup>8</sup>	10 <sup>9</sup>
<sup>110</sup> Ag	3,73	3,15	0,33	0,00	0,00	0,00	0,01	0,02	0,00	0,00
<sup>110m</sup> Ag	0,17	0,18	0,24	0,28	0,34	0,47	0,92	3,49	0,63	0,00
<sup>137m</sup> Ba	0,01	0,01	0,01	0,00	0,00	-0,01	-0,01	-0,07	-0,20	-8,50
<sup>134</sup> Cs	2,97	3,23	4,27	4,96	6,02	8,32	16,45	75,68	94,24	0,53
<sup>136</sup> Cs	12,74	13,87	18,32	21,25	25,69	33,58	38,53	0,77	0,00	0,00
<sup>137</sup> Cs	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	-0,02	-0,06	-2,58
<sup>138</sup> Cs	1,24	1,35	1,73	1,45	0,08	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>154</sup> Eu	0,19	0,21	0,28	0,32	0,39	0,54	1,09	5,37	13,84	112,7
<sup>156</sup> Eu	1,09	1,19	1,57	1,83	2,21	2,91	3,62	0,16	0,00	0,00
<sup>130</sup> I	3,38	3,68	4,86	5,58	5,91	2,01	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>140</sup> La	1,58	1,72	2,27	2,63	3,05	2,70	-0,12	0,00	0,00	0,00
<sup>99</sup> Mo	1,25	1,36	1,80	2,08	2,46	2,61	0,38	0,00	0,00	0,00
<sup>101</sup> Mo	4,07	4,39	5,39	3,07	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>95</sup> Nb	-0,84	-0,92	-1,21	-1,41	-1,71	-2,30	-3,68	-1,88	0,00	0,00
<sup>96</sup> Nb	2,91	3,17	4,19	4,82	5,44	3,58	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>97</sup> Nb	0,57	0,62	0,82	0,95	1,09	0,54	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>149</sup> Nd	0,83	0,90	1,18	1,24	0,55	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>151</sup> Nd	0,86	0,93	1,12	0,57	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>147</sup> Pm	-0,06	-0,06	-0,08	-0,09	-0,12	-0,16	-0,31	-1,47	-2,24	-0,10
<sup>148</sup> Pm	5,33	5,80	7,66	8,88	10,65	12,93	7,42	0,87	0,00	0,00
<sup>148m</sup> Pm	6,26	6,82	9,01	10,45	12,68	17,22	28,84	25,15	0,00	0,00
<sup>142</sup> Pr	1,85	2,01	2,66	3,06	3,41	1,90	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>144</sup> Pr	0,17	0,18	0,23	0,08	-0,37	-0,51	-0,98	-3,84	-1,01	0,00
<sup>104</sup> Rh	12,59	11,98	4,56	0,14	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>105</sup> Rh	0,77	0,84	1,10	1,28	1,54	1,43	0,02	0,00	0,00	0,00
<sup>106</sup> Rh	-0,36	-0,40	-0,62	-0,73	-0,89	-1,23	-2,41	-10,07	-4,68	0,00
<sup>103</sup> Ru	1,16	1,26	1,66	1,93	2,34	3,18	5,29	4,25	0,00	0,00
<sup>105</sup> Ru	4,02	4,38	5,76	6,43	5,29	0,15	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>107</sup> Ru	1,24	1,31	1,31	0,10	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>151</sup> Sm	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	-0,02	-0,05	-3,38
<sup>160</sup> Tb	0,15	0,17	0,22	0,26	0,31	0,42	0,77	1,43	0,00	0,00
<sup>100</sup> Tc	15,54	11,41	0,29	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<sup>101</sup> Tc	1,68	1,83	2,41	2,27	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tab. II.4 : Taux de contribution à l'effet de capture des produits de fission (jaune : contribution  $\geq 1$  % ; vert : contribution  $\leq -1$  %).

## PARTIE II

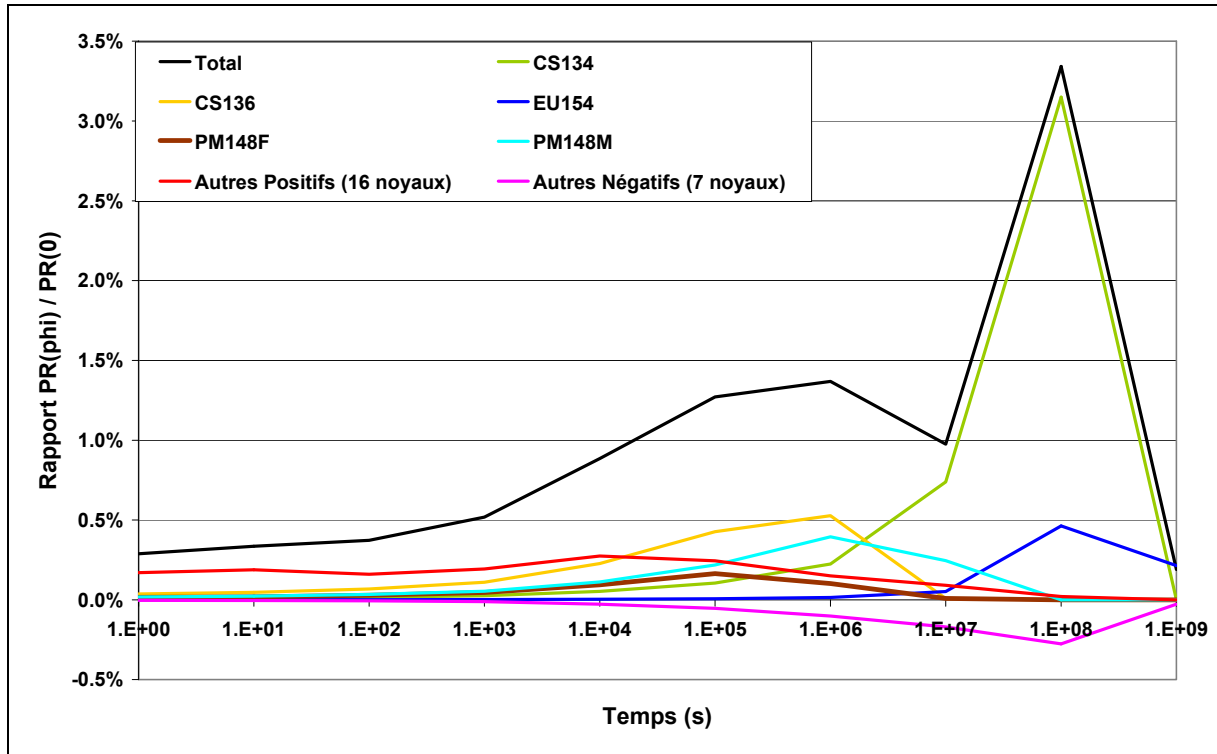


Fig. II.25 : Contributions des principaux noyaux à l'effet de capture.

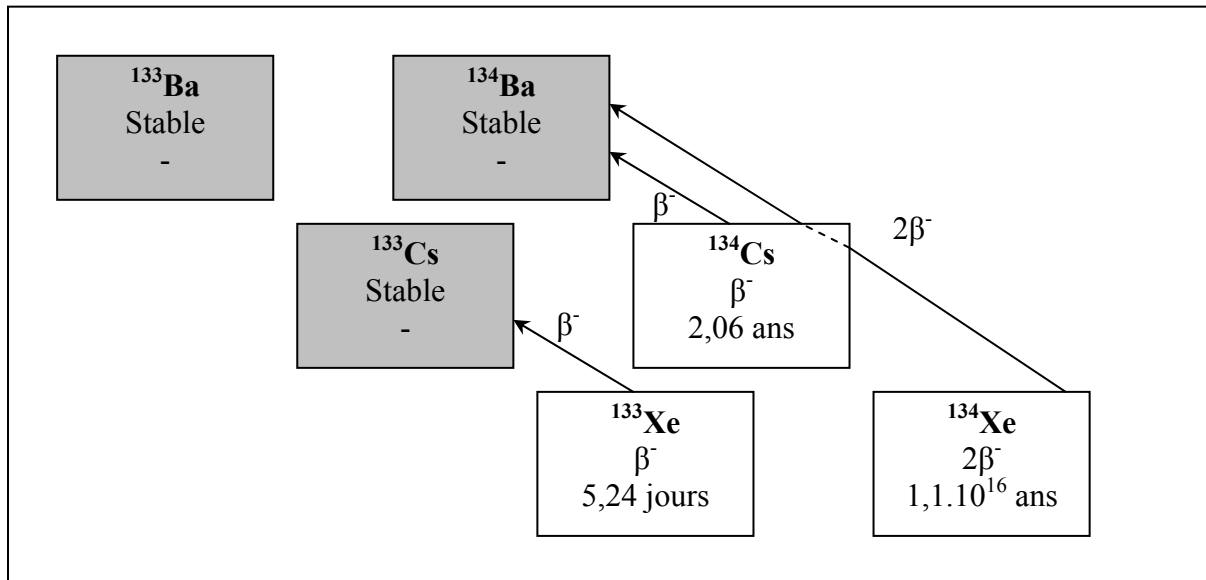


Fig. II.26 : Schéma de décroissance du  $^{134}\text{Cs}$  écranté par le  $^{134}\text{Xe}$ .

Ces raisons sont explicitées par la **figure II.26** pour l'exemple du  $^{134}\text{Cs}$ . Ce noyau est proche de la vallée de stabilité, donc ses rendements de fissions sont très faibles ( $6,1 \cdot 10^{-6}$  pour la fission rapide du  $^{239}\text{Pu}$ ). Les noyaux qui sont créés dans la chaîne de nombre de masse  $A = 134$  décroissent jusqu'au  $^{134}\text{Xe}$ . Ce noyau ne peut décroître vers le  $^{134}\text{Cs}$  car la décroissance  $\beta^-$  est interdite. Par contre, il décroît suivant une réaction double bêta vers le  $^{134}\text{Ba}$  de façon

extrêmement lente ( $1,1 \cdot 10^{16}$  ans). Le  $^{134}\text{Cs}$  n'est donc pas produit par les noyaux ayant le même nombre de masse que lui, mais principalement par la capture neutronique du  $^{133}\text{Cs}$ . Pour les autres noyaux précédemment cités, le  $^{136}\text{Xe}$  et le  $^{148}\text{Nd}$  décroissent directement vers les  $^{136}\text{Ba}$  et  $^{148}\text{Sm}$  suivant une décroissance double bêta. Le  $^{154}\text{Sm}$  est quant à lui un noyau stable.

## B – Etude de l'influence des paramètres d'irradiation

L'effet de capture des produits de fission est fortement sensible aux conditions d'irradiation puisque celui-ci dépend des sections efficaces, du flux et du spectre neutroniques. Deux impacts sont étudiés : l'augmentation du niveau de flux neutronique et l'allongement des durées d'irradiation (donc du taux de combustion).

L'augmentation du niveau du flux neutronique a peu d'impact sur l'effet de capture si cette augmentation reste dans des valeurs raisonnables (voir **figure II.27**). Une augmentation du niveau du flux de 10 % induit une augmentation maximale de l'effet de capture de 0,5 % en valeur absolue (après 3 ans de refroidissement).

Cette figure, ainsi que l'impression qui s'en dégage, diffère largement de la figure que présente TASAKA. En effet, TASAKA présente une figure avec un effet de capture calculé pour une valeur du niveau de flux neutronique moyen de RNR et une valeur 10 fois supérieur (voir **figure II.22**). Cette valeur de flux est irréaliste dans un RNR. L'augmentation du flux n'est ici que de 10 % maximum. La raison est que l'incertitude à un écart-type sur la puissance de la centrale PHENIX étant estimée à 1 %, et le flux étant directement lié à cette puissance, supposer un écart de 10 % sur le flux neutronique est déjà une forte surestimation.

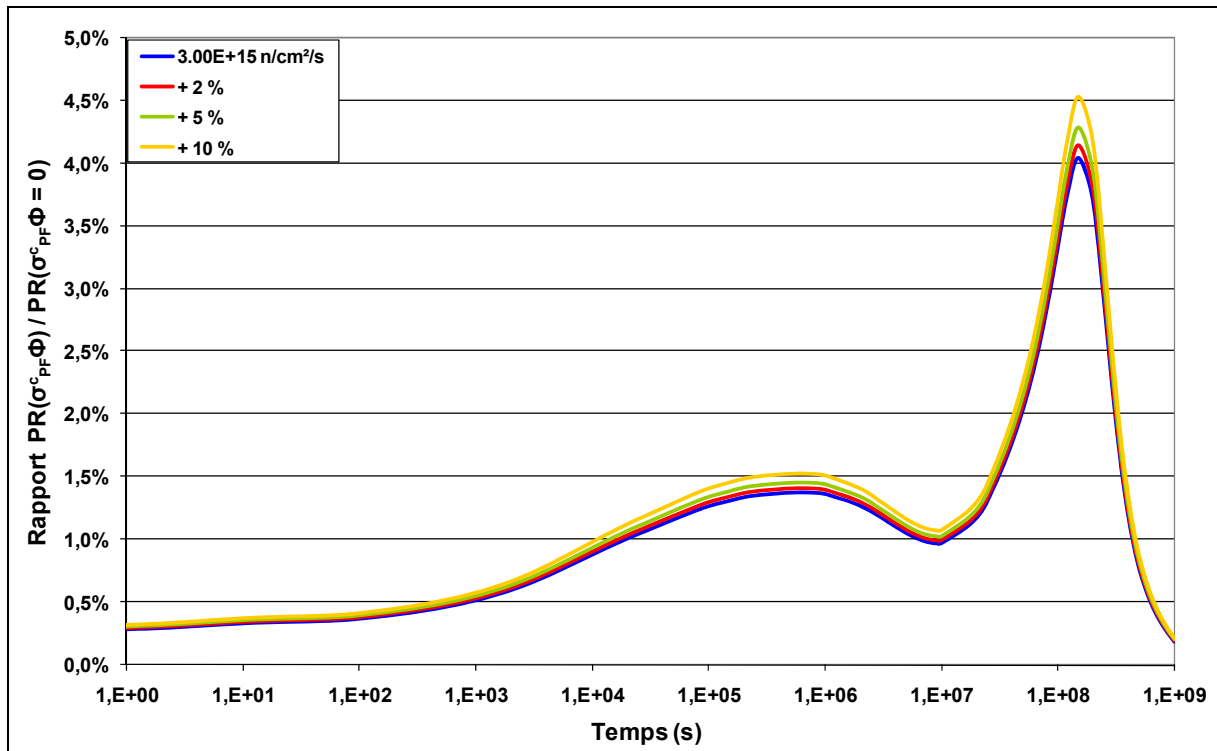


Fig. II.27 : Effet de capture des produits de fission pour différentes intensités de flux.

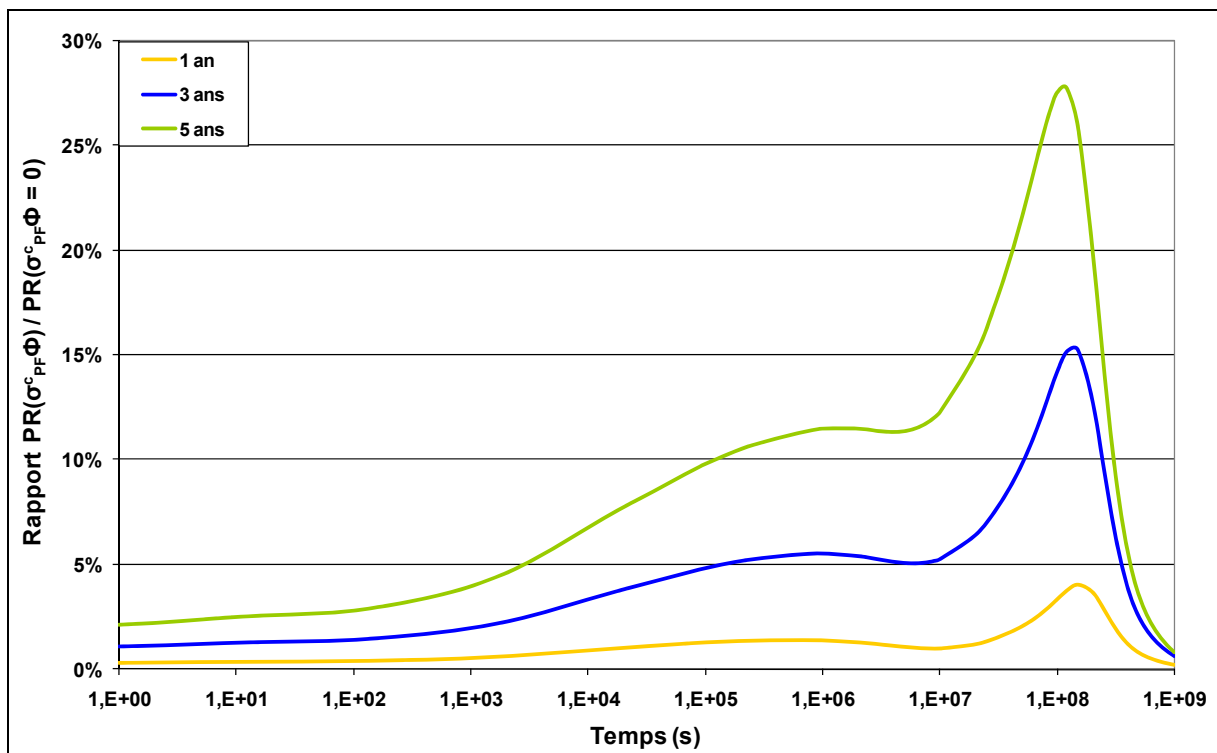


Fig. II.28 : Effet de capture des produits de fission pour différents temps d'irradiation et donc différents taux de combustion.

Au contraire, l'allongement du temps d'irradiation peut être beaucoup plus étendu puisque même si le temps moyen d'irradiation d'un assemblage fissile de la centrale PHENIX est d'un

an, certains assemblages ont été irradiés jusqu'à près de trois ans pour un assemblage fissile et près de cinq ans pour un assemblage fertile.

La **figure II.28**, montre que l'effet des captures neutroniques des produits de fission est à prendre obligatoirement en considération lorsque le temps d'irradiation devient long. Après 3 ans d'irradiation, l'apport de puissance résiduelle est supérieur à 5 % après 1 jour de refroidissement, et peut atteindre 15 % après  $1,8.10^8$ s (5,7 ans).

## **C – Evaluation de l'effet de capture sur les assemblages PHENIX de l'essai PUIREX**

Pour avoir une idée de l'impact de l'effet de capture suite à une irradiation dans un réacteur, des calculs ont été réalisés sur deux assemblages représentatifs. Le premier assemblage est de composition fissile, positionné dans le cœur interne (C1). Il est irradié pendant un an, ce qui équivaut à sa durée de vie moyenne en cœur. Le deuxième assemblage est de composition fertile, positionné dans la deuxième couronne fertile du cœur (FEG). Il est irradié pendant trois ans, ce qui équivaut à sa durée de vie moyenne en cœur. La **figure II.29** présente le résultat de ces calculs.

De plus, dans le but de quantifier l'impact maximal de l'effet de capture, les calculs précédents ont été repris avec les durées maximales d'irradiation des assemblages présents au moment de l'essai PUIREX : 993 jours pour un assemblage de composition fissile en cœur interne et 1771 jours pour un assemblage de composition fertile en deuxième couronne de fertiles. Seuls les résultats chiffrés de ces calculs seront présentés.

L'effet de capture des assemblages étudiés, dans le cas d'une irradiation moyenne, est assez faible puisqu'il s'élève au maximum à 2,3 % (voir **figure II.29**). Pour les durées d'irradiation maximum – non représentées – l'effet de capture peut être beaucoup plus important : 9% pour l'assemblage fissile et 4 % pour l'assemblage fertile. Toujours d'après la **figure II.29**, mais dans le cas de l'essai PUIREX de 2008 dont les temps de refroidissement sont compris entre 1h30 et 12 jours ( $5,4.10^3$  -  $1.10^6$  secondes), l'effet de capture est maximum après 12 jours de refroidissement. Il est de l'ordre de 1 % dans le cas d'une irradiation moyenne, et égal à 3,5 %

pour l'assemblage de composition fissile – respectivement 1 % pour l'assemblage de composition fertile – pour les temps d'irradiation maximum.

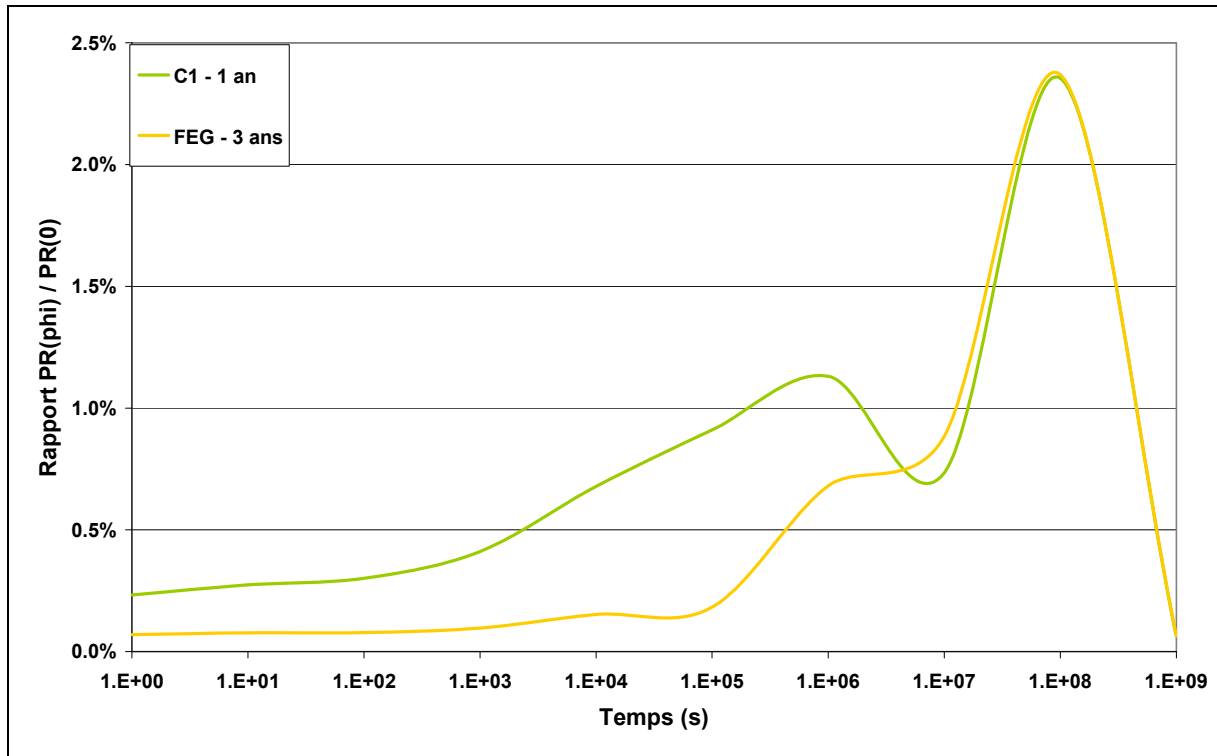


Fig II.29 : Effet de capture des assemblages fissile (C1) et fertile (FEG) de PHENIX pour une irradiation moyenne.

Ces résultats mis à part, la **figure II.29** présente des courbes d'allure particulière. Le noyau contribuant le plus à la fission dans les assemblages fissiles et fertiles est le  $^{239}\text{Pu}$ , or la forme des courbes de la **figure II.29** ne semble pas être cohérente avec celle présentée dans la **figure II.23**. Cela est particulièrement visible sur le premier pic apparaissant pour les temps de refroidissement compris entre  $1.10^4$  et  $1.10^6$  secondes. Dans la **figure II.23**, ce pic est tronqué.

La différence présentée ci-dessus est à comparer à la différence des courbes de la **figure II.30**. Celle-ci présente les courbes de l'effet de capture des produits de fission des 5 noyaux lourds conservés dans le I : les  $^{235,238}\text{U}$  et  $^{239,240,241}\text{Pu}$ . La courbe de l' $^{238}\text{U}$  diffère elle aussi de celle de l' $^{235}\text{U}$  et de celle des isotopes du plutonium par le premier pic qui semble tronqué.

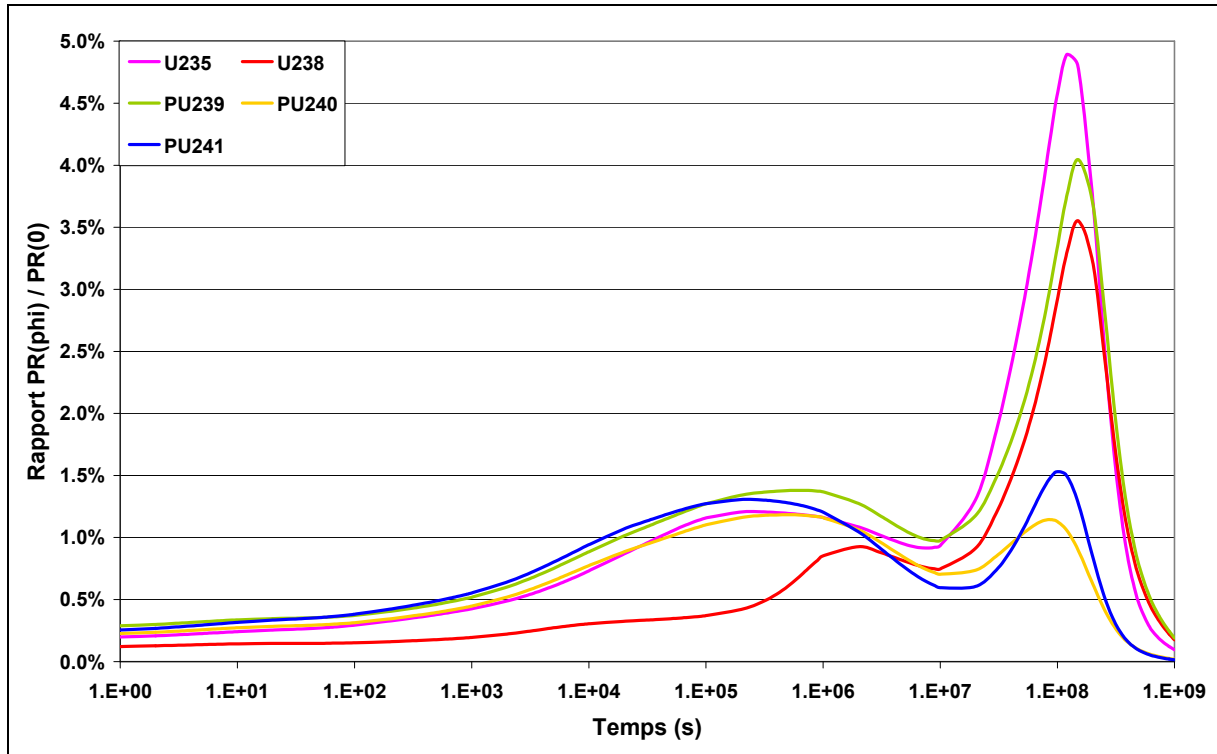


Fig. II.30 : Effet de capture pour une irradiation d'un an de chacun des noyaux lourds.

Le responsable de ce phénomène est le  $^{239}\text{Np}$ . Il provient de la décroissance bêta de l' $^{239}\text{U}$  (23,47 minutes) qui est créé par la capture radiative de l' $^{238}\text{U}$ . Pour obtenir la **figure II.30**, une simulation d'un échantillon pur du noyau lourd considéré et irradié par un flux neutronique est réalisée. Ce noyau lourd a des sections efficaces de fission et de capture. La puissance résiduelle calculée pour l' $^{235}\text{U}$  et les isotopes du plutonium provient presque exclusivement des produits de fission. La puissance résiduelle de l' $^{238}\text{U}$  provient des produits de fission de l' $^{238}\text{U}$  mais aussi de la décroissance de l' $^{239}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Np}$ . Or, le  $^{239}\text{Np}$  est un contributeur important de la puissance résiduelle aux temps courts dans les assemblages des réacteurs, et en particulier pour les assemblages fertiles. L'effet de capture des produits de fission est alors écranté par la puissance résiduelle relâchée par le  $^{239}\text{Np}$ . Si la puissance résiduelle de ce noyau n'est pas prise en compte, la forme traditionnelle de l'effet de capture apparaît (voir **figure II.31**).

Ainsi, les formes des courbes de la **figure II.30** s'expliquent par la présence d' $^{238}\text{U}$  produisant une quantité importante de  $^{239}\text{Np}$  dont la contribution à la puissance résiduelle n'est pas négligeable, même dans un assemblage de composition fissile.



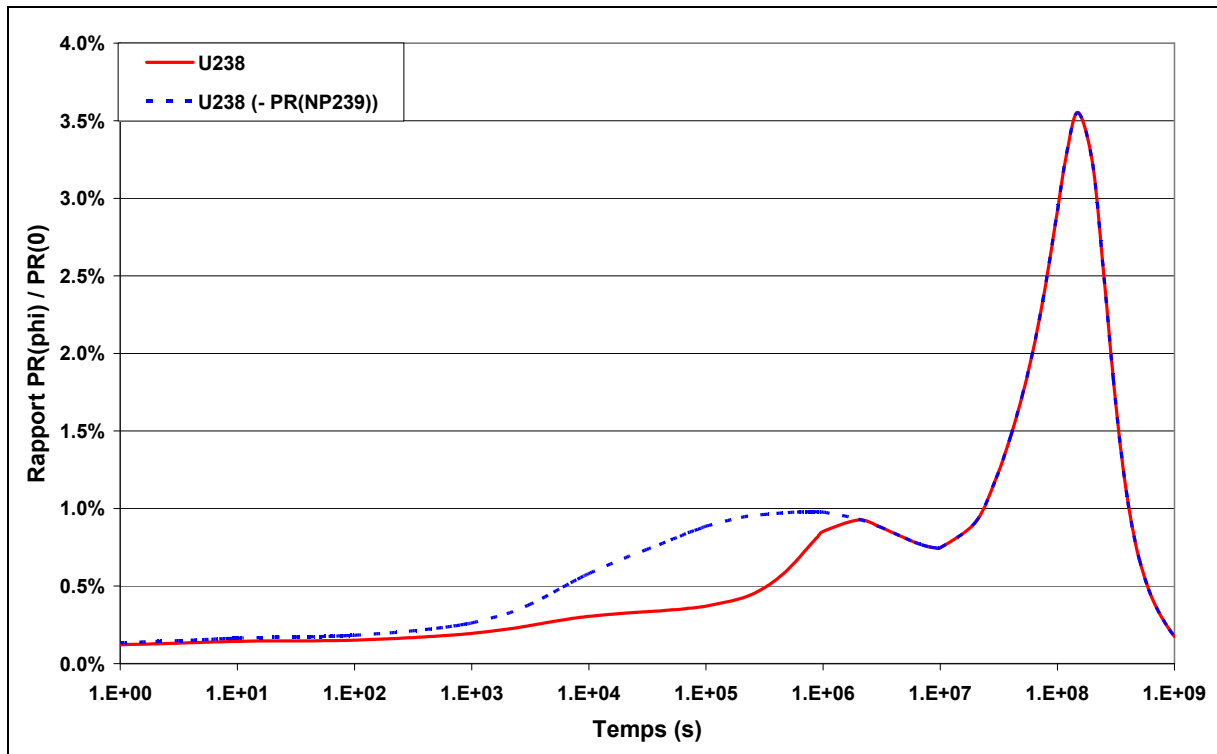


Fig. II.31 : Effet de la non-prise en compte de la puissance résiduelle du  $^{239}\text{Np}$  sur l'effet de capture du  $^{238}\text{U}$  (rouge : rapport des puissances résiduelles de l' $^{238}\text{U}$ , bleu : rapport des puissances résiduelles de l' $^{238}\text{U}$  retranché de la composante  $^{239}\text{Np}$ ).

Pour conclure, l'impact de l'effet de capture dans l'essai PUIREX de 2008 est en moyenne de 1 % et peut s'élever jusqu'à 3,5 %. Sachant que le critère de sélection des noyaux pour la création des chaînes d'évolution défini au paragraphe I.A.1 propose une précision sur la puissance résiduelle à 1 % près, l'impact de l'effet de capture dans l'essai PUIREX est suffisamment important pour qu'il soit pris en compte.

Enfin, dans le cas de calculs d'incertitude de la puissance résiduelle pour des problématiques de transport de combustible usé, la valeur du deuxième pic de l'effet de capture à  $10^8$  secondes (3 ans) montre à quel point il est important de prendre en compte ce phénomène physique.

## **PARTIE III**

# **DEVELOPPEMENT ET VALIDATION D'UN CODE DE PROPAGATION DES INCERTITUDES : CYRUS**

Dans la partie précédente, les contributeurs principaux de la puissance résiduelle aux temps courts ont été isolés : les assemblages fissiles et fertiles du cœur du réacteur.

De plus, il a été montré que les produits de fissions sont les noyaux qui produisent le plus de chaleur mais que certains noyaux lourds sont également à prendre en compte. D'ailleurs, pour calculer précisément les concentrations des produits de fission, il a été établi qu'une modélisation fine des chaînes de réaction des noyaux lourds est nécessaire.

Enfin, une étude détaillée de l'effet de capture a permis de montrer que les captures neutroniques des produits de fission doivent être prises en compte pour l'essai PUIREX et pour des gammes de temps de refroidissement plus étendues car l'impact sur la puissance résiduelle n'est pas négligeable. Outre les sections de capture des produits de fission, les données nucléaires importantes à modéliser, ont été répertoriées : les rendements de fission, les constantes de décroissance, les énergies de décroissance, les rapports de branchement et les réactions des noyaux lourds.

Maintenant que l'étude a été limitée aux paramètres les plus influents sur la puissance résiduelle, mais qui permettent de la décrire finement, l'objectif est de propager l'incertitude des données nucléaires de façon à obtenir une évaluation de l'incertitude de la concentration des noyaux et de la puissance résiduelle et aussi de mettre en avant les données contribuant le plus à ces incertitudes.

## **Chapitre 1 – Sélection d’une méthode de propagation des incertitudes adaptée à la problématique de la puissance résiduelle**

Le premier objectif de ce chapitre est de sélectionner parmi les codes existants, un code de calcul qui réponde à la problématique de la thèse, ou qui du moins, puisse être adapté pour répondre à cette problématique. Pour cela il doit regrouper les qualités suivantes : propager les incertitudes de toutes les données décrites précédemment, les propager sur le bilan matière et sur la puissance résiduelle, enfin classer les données suivant l’impact qu’une amélioration de la donnée a sur la diminution de l’incertitude du bilan matière et de la puissance résiduelle.

Il est nécessaire que le code possède ces qualités car le but de la thèse est d’avoir un outil utilisable pour les expériences de bilan matière et les expériences de puissance résiduelle toutes deux nécessaires à la qualification des codes d’évolution, et d’avoir un outil de prospection qui permettent de connaître l’origine des incertitudes.

Le deuxième objectif de ce chapitre est d’analyser la possibilité d’utiliser une méthode déterministe ou une méthode stochastique pour la propagation des incertitudes. Le critère utilisé pour discriminer ces deux méthodes est le temps de calcul puisque le but de la thèse est de pouvoir réaliser plusieurs études d’incertitudes pendant les trois ans du contrat.

Le temps de calcul considéré comme rapide pour les études qui nous intéressent est de l’ordre de la journée pour une propagation complète des incertitudes sur le bilan matière et sur la puissance résiduelle. Cela permet au calcul d’être effectué suffisamment rapidement pour pouvoir en réaliser plusieurs et pouvoir analyser les résultats durant la thèse.

### **I – Analyse des codes existants de calcul de la puissance résiduelle et de propagation des incertitudes**

De nombreux codes de calcul de la puissance résiduelle et de propagation des incertitudes sur la puissance résiduelle ont été développés par le passé. Il serait opportun d’utiliser un de ces codes, si possible validé, pour réaliser notre étude.

Deux possibilités sont à prendre en compte : soit l'un des codes de propagation des incertitudes est adapté ou peut être facilement adapté à notre étude, soit un code d'évolution peut facilement être couplé à un module de propagation des incertitudes.

Il existe deux façons de propager les incertitudes : la méthode déterministe et la méthode stochastique.

Pour les codes déterministes, une liste des différents codes référencés est établie ci-après : Non nommé [1][2][3][4], PEPER [5], RASPA [6], FISPIN [7][8], INVENT [9], FISP-6 [10], FAKIR [11], DPEPIN [12], DARWIN [13].

Les codes stochastiques sont plus souvent le résultat d'un couplage d'une plateforme de propagation des incertitudes avec un code d'évolution, par exemple : URANIE/MENDEL [14][15] ou MCNP/ACAB [16].

## **A – Analyse des codes de propagation déterministes**

### **1) Disponibilité des codes**

Tout d'abord, certains de ces codes n'ont pas été pérennisés. Les codes suivants ne sont pas disponibles auprès des laboratoires développeurs ni auprès de l'AEN : Non nommé [1], PEPER, DPEPIN. Néanmoins, la méthodologie utilisée dans ces codes sera revue.

Le code FAKIR est disponible au CEA et a été utilisé pour l'étude de l'expérience MERCI [17]. Il est cependant développé en FORTRAN-IV.

Les codes FISPIN, FISP-6 et INVENT, créés en Grande-Bretagne sont disponibles à l'AEN. Les deux premiers ont été développés en FORTRAN-IV et le dernier en FORTRAN-77. Le code RASPA est lui aussi disponible à l'AEN

Le code DARWIN est disponible au CEA.

## 2) Domaine de validité des codes

La plupart de ces codes ont été créés afin de modéliser les courbes de fission élémentaire et d'avoir un retour sur les données nucléaires à améliorer ; ainsi ces codes ne prennent en compte que les produits de fission. Qui plus est, leurs résultats ne concernent que la puissance résiduelle et pas le bilan matière.

Il apparaît donc que les codes FISP-6, INVENT, DPEPIN, FAKIR, RASPA et ceux de SCHMITTROTH, SCHENTER et SPINRAD ne sont pas adaptés à notre étude.

De plus, le code FAKIR est adapté au réacteur à eau légère, mais ne peut être adapté aux réacteurs à neutrons rapides.

Seuls les codes comme FISPIN et DARWIN possédant un vrai module d'évolution répondent à ce critère.

## 3) Méthode de propagation des incertitudes

Le code DARWIN contient un module de perturbation mais pas de module de propagation des incertitudes. Ce module de perturbation permet de demander la modification de la valeur d'un paramètre d'entrée. Le code réalise alors un calcul de référence et un calcul perturbé. Cela permet de connaître la sensibilité de la puissance résiduelle ou de la concentration d'un noyau à un paramètre mais pas de connaître l'incertitude totale. Les paramètres pouvant être perturbés au début de la thèse étaient les énergies de décroissance et les périodes. La possibilité de perturber les rendements de fission n'a été implémentée qu'au cours de l'année 2011.

Une grande partie des codes précédents utilisent les rendements de fission cumulés pour réaliser leurs calculs d'incertitude et d'évolution. Afin de réaliser un code qui puisse autant traiter une fission élémentaire qu'un temps infini d'irradiation, il semble préférable de ne pas utiliser les rendements cumulés (voir la partie II chapitre 2).

De plus, la plupart des codes négligent l'impact des sections efficaces de capture et les rapports de branchement.

En conclusion, il ne semble pas possible d'utiliser un code existant de propagation déterministe des incertitudes.

## **B – Analyse des codes de propagation stochastiques**

### **1) Analyse de la disponibilité des codes**

La plateforme de propagation stochastique des incertitudes URANIE est disponible au CEA/DEN. Elle est basée sur un framework ROOT [18] et peut être couplée avec les codes d'évolution du CEA. Le couplage URANIE/DARWIN n'est pas envisagé actuellement. En revanche, un couplage URANIE/MENDEL est en cours de développement. MENDEL est le nom du code d'évolution de nouvelle génération (ModElisationN code for DEpletion in nucLear systems), actuellement en cours de développement au CEA/DEN. Ce développement s'inscrit dans une démarche globale et cohérente avec les autres codes du CEA (tels que APOLLO3 et TRIPOLI4) visant à mettre à disposition du CEA et de ses partenaires industriels une nouvelle génération d'outils devant répondre à l'ensemble de leurs besoins en matière du cycle du combustible. Actuellement, les fonctionnalités du couplage URANIE/MENDEL ne sont pas encore complètement opérationnelles ni validées.

Le code ACAB, développé au sein du projet CIEMAT est un solveur des équations de Bateman. Il intègre directement une routine MCNP (Monte-Carlo) afin de propager les incertitudes des paramètres. Il est disponible dans sa version 2008 à l'AEN.

### **2) Domaine de validité des codes**

A terme, le couplage URANIE/MENDEL devrait pouvoir propager les incertitudes des différents paramètres intervenant dans les équations de Bateman et dans la formule de la puissance résiduelle. Il fonctionnera pour des réacteurs à eau légère comme pour des réacteurs à neutrons rapides.

Le code ACAB disponible à l'AEN ne permet de propager que les incertitudes provenant des sections efficaces. La propagation des incertitudes des données nucléaires est en cours de développement.

Pour conclure sur les codes existants de propagation des incertitudes, les premiers codes n'existent plus ou ne sont pas utilisables pour les applications que nous voulons réaliser. De plus, ils sont souvent écrits dans des langages devenus obsolètes. Les nouveaux codes de propagation de l'incertitude sur la puissance résiduelle ne sont pas encore suffisamment matures afin d'être utilisés pour notre étude.

Il va falloir, au sein de la thèse, coder des routines permettant de propager les incertitudes.

## **II – Choix de la méthode déterministe ou probabiliste de propagation des incertitudes**

Puisqu'il va falloir développer un code de propagation des incertitudes, deux choix sont possibles : une propagation déterministe ou une propagation stochastique. Les critères de ce choix sont : la rapidité de la mise en œuvre de la méthode et la possibilité d'être intrusif dans le calcul de propagation (pouvoir obtenir des informations sur l'impact des paramètres à différents endroits du calcul).

La méthode probabiliste est, de prime abord, simple à mettre en place. Il suffit d'échantillonner un paramètre et de réaliser autant de fois le calcul du résultat qu'il y a d'échantillons. Cependant, afin d'obtenir une bonne statistique, le nombre d'échantillons doit être grand ( $\sim 10\,000$  ou  $100\,000$ ), ce qui, dans le cas d'un grand nombre de paramètres (comme c'est le cas pour les calculs d'évolution) produit des fichiers de résultats très volumineux et peu pratiques. De plus, à chaque fois que l'incertitude d'un paramètre est modifiée (exemple : étude du gain sur l'incertitude du résultat dans le cas d'une diminution de l'incertitude du paramètre), tous les calculs sont à recommencer.

La méthode déterministe commence par calculer des quantités qui illustre l'impact d'un paramètre sur le résultat : les sensibilités (A la différence du calcul probabiliste, ces quantités ne nécessitent pas l'utilisation des valeurs d'incertitudes et pourront être réutilisées pour



accélérer les calculs dans le cas de l'exemple précité). Grâce à ces quantités, les paramètres peuvent être classés du plus impactant au moins impactant. Cela permet ensuite : d'éviter d'alourdir les calculs ultérieurs en évinçant les paramètres négligeables de l'étude, à mettre en avant les paramètres à fort impact pour qu'ils soient préférentiellement étudiés en profondeur, et de calculer l'incertitude du résultat grâce à une formule de propagation. Cette méthode demande, dans un cas basique, de calculer les  $N$  coefficients de sensibilité (où  $N$  est le nombre de paramètres ( $\sim 3000$ )), c'est-à-dire de réaliser  $N+1$  calculs du résultat, puis de réaliser un calcul de propagation.

Ainsi, le nombre de calcul à effectuer en utilisant une méthode déterministe semble être plus faible. De plus, le calcul des sensibilités permet une analyse de l'impact des paramètres en profondeur (il est possible de réaliser ce calcul des sensibilités avec la méthode probabiliste, mais cela demande des calculs supplémentaires).

Enfin, la réalisation d'un code de propagation déterministe permettra au CEA de posséder les deux types de codes afin : d'exploiter les atouts de chacun, de valider les résultats de l'un grâce aux résultats de l'autre.

La conclusion de ce chapitre est qu'il est nécessaire de développer un code de propagation des incertitudes, et que celui-ci sera basé sur une méthode déterministe.

## **Chapitre 2 – Développement d'un code déterministe de propagation des incertitudes des données nucléaires sur le bilan matière et la puissance résiduelle : CYRUS (Cycle Reactor Uncertainty and Sensitivity)**

La puissance résiduelle est la somme des puissances libérées par un grand nombre de noyaux. Elle est calculée grâce aux données suivantes : concentration isotopique, constante de décroissance, énergie de décroissance. Les incertitudes des données nucléaires (constante et énergie de décroissance) sont disponibles dans les bibliothèques de données nucléaires. En revanche, il est nécessaire de calculer l'incertitude des concentrations isotopiques.

La meilleure connaissance de la concentration isotopique des assemblages combustibles est obtenue quand ceux-ci sortent de l'usine de fabrication et avant toute irradiation. En conséquence, il est nécessaire de reproduire l'historique d'irradiation des assemblages et de propager les incertitudes des données nucléaires sur la concentration pendant l'irradiation et durant le refroidissement.

Le premier objectif de ce chapitre est de décrire en termes mathématiques la propagation des incertitudes des données nucléaires sur la concentration du combustible en irradiation et en refroidissement, puis de décrire la propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle.

Ensuite, il faudra choisir la méthode pour calculer à la fois les sensibilités des concentrations aux données nucléaires et les sensibilités de la puissance résiduelle aux données nucléaires et à la concentration. Deux méthodes peuvent être mises en œuvre : la méthode directe ou la méthode adjointe.

Enfin, il restera à compléter les matrices de covariance de l'équation de propagation des incertitudes. Les données nucléaires, tirées de la bibliothèque JEFF3.1.1 (évaluation européenne des données nucléaires la plus récente) seront analysées et une corrélation entre ces données sera proposée.

## I – Formulation du problème de la propagation des données nucléaires

Il a été vu précédemment que la puissance résiduelle est modélisée par la formule ci-dessous :

$$PR(t) = \sum_i N_i(t) \lambda_i E_i$$

Son calcul nécessite de connaître la concentration des noyaux instables à la fin de l'irradiation et au cours du refroidissement. Cette information est obtenue par la modélisation de l'évolution de la concentration au cours de l'irradiation et du refroidissement grâce aux équations d'évolution.

Sous irradiation :

$$\begin{cases} \frac{dN_i}{dt}(t) = \sum_F N_F \phi \sigma_F^f Y_{F \rightarrow i}^i + \sum_j (\phi \sigma_{j \rightarrow i}^c + \lambda_{j \rightarrow i}) N_j - (\phi \sigma_i^c + \lambda_i) N_i \\ N_i(t=0) = N_i^0 \end{cases}$$

En refroidissement :

$$\begin{cases} \frac{dN_i}{dt}(t) = \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j - \lambda_i N_i \\ N_i(t=0) = N_i(\text{fin irradiation}) \end{cases}$$

Comme le calcul de la valeur de la puissance résiduelle, le calcul de son incertitude va être réalisé en trois étapes. Premièrement, la propagation des incertitudes des données nucléaires sur la concentration isotopique du combustible sous irradiation afin de calculer l'incertitude du bilan matière à la fin de l'irradiation. Deuxièmement, la propagation de l'incertitude de la concentration des noyaux en fin d'irradiation et des données nucléaires présentes dans les équations d'évolution en refroidissement, sur la concentration des noyaux pour les temps de

refroidissement définis. Troisièmement, la propagation des incertitudes de la concentration des noyaux en refroidissement et des données nucléaires sur la puissance résiduelle.

### **A – Propagation des incertitudes sur le bilan matière**

L'adaptation de la formule déterministe de propagation des incertitudes au premier ordre du bilan matière prend la forme décrite ci-dessous. Les termes de propagation des données nucléaires et des concentrations ont été séparés car il n'y a pas de corrélation entre eux quand le combustible est neuf.

$$VAR(N) = {}^t S(N/p) VAR(p) S(N/p) + {}^t S(N/N^0) VAR(N^0) S(N/N^0)$$

t : exposant permettant d'exprimer que la matrice dont il est suivi est transposée.

La matrice de covariance des concentrations, VAR(N), est une matrice carrée de dimension n, où n est le nombre de noyaux considérés. La matrice de covariance des concentrations initiales, VAR(N<sup>0</sup>), a la même dimension. La matrice de covariance des données nucléaires, VAR(p), est carrée de dimension p, où p est le nombre de données nucléaires perturbées.

La matrice de sensibilité S(N/P) est rectangle et contient p lignes et n colonnes. La matrice de sensibilité S(N/N<sup>0</sup>) est carrée de dimension n.

### **B – Propagation des incertitudes sur la puissance résiduelle**

L'adaptation de la formule déterministe de propagation des incertitudes sur la puissance résiduelle peut prendre la forme très générale ci-dessous.

$$VAR(PR) = {}^t S(PR/p) VAR(p) S(PR/p)$$

Où p est soit l'énergie, la constante de décroissance ou la concentration des différents noyaux. La matrice de variance des paramètres aurait la forme ci-dessous où les termes non-diagonaux (i.e. les covariances) ne sont pas exprimés. Ces covariances représentent le lien entre deux paramètres multiplié par leurs incertitudes respectives.

$$VAR(p) = \begin{pmatrix} \text{var}(N_1) & & & & & \\ & \ddots & & & & \\ & & \text{var}(N_n) & & & \\ & & & \text{var}(\lambda_1) & & \\ & & & & \ddots & \\ & & & & & \text{var}(\lambda_n) \\ & & & & & & \text{var}(E_1) \\ & & & & & & & \ddots \\ & & & & & & & & \text{var}(E_n) \end{pmatrix}$$

Les corrélations entre les rendements de fission, les périodes et les énergies peuvent être considérées comme nulles d'après REBAH [12] et KATAKURA [19]. Cette hypothèse est explicitée ci-dessous.

La période est mesurée à partir de l'activité d'un échantillon. Son incertitude n'a a priori aucun lien avec d'autres données.

Les énergies de décroissance sont obtenues : soit à partir des spectres d'énergie obtenus à partir de mesures des rayonnements gamma et bêta et de la théorie, soit à partir de la connaissance du  $Q_{\beta \max}$  (l'énergie moyenne de décroissance du bêta est alors estimée à un tiers de l'énergie du  $Q_{\beta \max}$  ce qui est une bonne approximation). En conséquence, les énergies de décroissance ne peuvent être corrélées à d'autres paramètres.

Les utilisateurs de certaines bibliothèques, en particulier ceux utilisant la bibliothèque de données nucléaires japonaise (JENDL), ne peuvent faire cette hypothèse d'indépendance car les énergies des noyaux participant au « pandemonium problem » [20] sont calculées à partir de la Gross Beta Theory qui relie ces deux paramètres.

Enfin, il n'y a pas de corrélation entre les rendements de fission et les autres paramètres car absolument rien ne les lie.

Cependant, dans le cas concernant cette thèse, ce n'est pas le rendement de fission qui est étudié mais la concentration en refroidissement. Cela ne change rien concernant la relation entre la concentration et les énergies de décroissance car rien ne les lie. Au contraire, les

concentrations des noyaux dépendent de leurs périodes. Il sera montré plus loin que l'incertitude des concentrations dépend extrêmement faiblement de l'incertitude des périodes. En conséquence, la corrélation entre ces deux paramètres peut être négligée.

Ainsi, l'équation devient :

$$VAR(PR) = S(PR / PR_i) [VAR(N) + VAR(\lambda) + VAR(E)] S(PR / PR_i)$$

où :

$S(PR/PR_i)$  est le vecteur sensibilité de la puissance résiduelle totale par rapport à la puissance résiduelle libérée par le noyau  $i$ .

Du fait de l'expression de la puissance résiduelle, la sensibilité de la puissance résiduelle aux concentrations, constante de décroissance, énergie d'un même noyau est rigoureusement la même. Cette sensibilité correspond exactement à la contribution  $C_i$  d'un noyau à la puissance résiduelle comme définie au chapitre 2 de la partie II.

$$S(PR / \lambda_i) = \frac{\lambda_i}{PR} \frac{\partial PR}{\partial \lambda_i} = \frac{\lambda_i}{PR} N_i E_i = \frac{PR_i}{PR} = S(PR / N_i) = S(PR / E_i)$$

Maintenant que les matrices de sensibilité et de covariance sont exprimées, les premières vont devoir être calculées et les secondes complétées par les données de la bibliothèque.

## C – Utilisation de la variance dans la définition des incertitudes

Le calcul d'une variance n'est pas un résultat suffisant car il lui manque une information. Celui-ci doit être raccordé à une estimation du domaine de confiance du résultat. C'est ce domaine de confiance qui permet de juger si un résultat est précis et qui permet de comparer plusieurs résultats entre eux.

Pour associer une variance à un intervalle de confiance, il est nécessaire de définir une loi de distribution du résultat. Cette loi de distribution correspond à la probabilité d'occurrence de toutes les valeurs d'une variable. Il est possible de la caractériser par le calcul de ses

moments. Par exemple, le moment d'ordre 1 est la moyenne, le moment d'ordre 2 la variance, le moment d'ordre 3 le coefficient de dissymétrie, le moment d'ordre 4 le coefficient d'aplatissement...

Si la loi de distribution est supposée gaussienne, alors seuls les deux premiers moments sont nécessaires pour la caractériser. En effet, la distribution est symétrique et le domaine de confiance dépend uniquement de la variance (voir **tableau III.1**). C'est pour cette raison, et parce qu'elle représente bien les fluctuations statistiques, que cette loi est très souvent utilisée.

Variance	Intervalle de confiance (%)
1	68,26
2	95,44
3	99,74

Tab. III.1 : Lien entre la variance et le domaine de confiance pour une loi normale.

Dans la suite, il sera considéré que toutes les lois de distribution sont gaussiennes. Cela n'est pas strictement le cas puisque la puissance résiduelle d'un noyau est le produit de trois variables (concentration, constante de décroissance, énergie) et que SCHWARTZ a démontré [21] que la multiplication de deux gaussiennes ne produit pas une gaussienne. Cette hypothèse très forte sera étudiée dans le chapitre 3 de cette partie.

## II – Méthode de calcul des matrices de sensibilité

Deux sortes de matrices de sensibilité sont à calculer, celles permettant de propager l'incertitude des données nucléaires sur les concentrations (en fin d'irradiation et en refroidissement) et celles permettant de propager l'incertitude des données nucléaires et des concentrations sur la puissance résiduelle.

### A – Méthode de calcul de la matrice de sensibilité du bilan matière

Il y a deux méthodes pour calculer la sensibilité du bilan matière par rapport aux données nucléaires. Soit la méthode directe en faisant un calcul d'évolution de référence puis en répétant ce calcul  $p$  fois, où  $p$  est le nombre de données nucléaires, et en perturbant à chaque

fois une seule des données nucléaires. Soit la méthode adjointe qui ne nécessite qu'un calcul direct et  $n$  calculs de concentrations adjointes, où  $n$  est le nombre d'isotopes. L'obtention des valeurs de la matrice de sensibilité par une méthode adjointe est explicitée dans la partie ANNEXE 2.

Ces méthodes nécessitent de résoudre les équations de Bateman afin de calculer les concentrations. Dans le chapitre 1, il a été montré qu'une utilisation d'un code d'évolution existant était impossible puisqu'aucun ne permet de réaliser les calculs appropriés ou que les sources ne sont pas disponibles. Le chapitre suivant sera consacré à l'étude de deux méthodes de résolution de ces équations. Suite à cela, il sera possible de comparer les méthodes de calcul des sensibilités.

### 1) Développement d'un solveur pour la résolution des équations de Bateman

La partie I décrit plusieurs méthodes de résolution des équations d'évolution. Il faut choisir la méthode la plus précise et la moins chronophage.

#### a) Présentation des méthodes de résolution

La méthode de résolution analytique a été utilisée dans les travaux de REBAH. Celle-ci est adaptée au calcul des produits de fission mais pas au calcul des noyaux lourds. En effet, il n'y a pas de solution au système des équations différentielles s'il y a une boucle dans les chaînes de réaction. Par exemple, cette méthode ne peut prendre en compte la formation d'un noyau qui a été précédemment formé par ce même noyau (voir **figure III.1**).

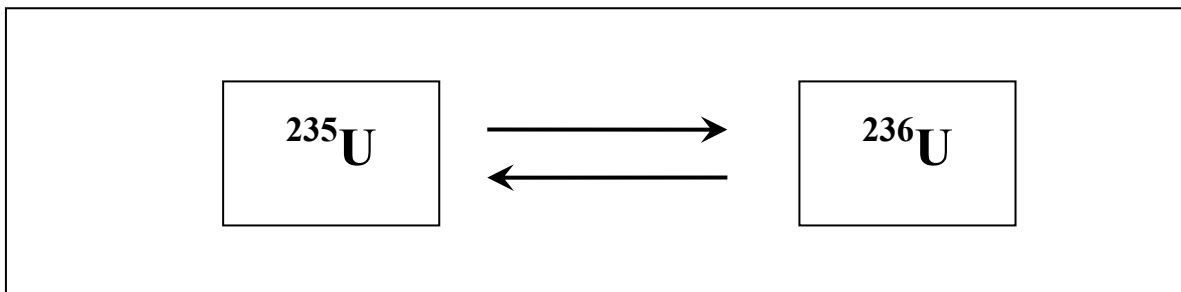


Fig. III.1 : Exemple d'une boucle due à la formation de  $^{236}\text{U}$  par la capture neutronique radiative de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{235}\text{U}$  par la capture neutronique (n,2n) de  $^{236}\text{U}$ .



Ces boucles sont très fréquentes parmi les noyaux lourds et bien qu'il existe des techniques numériques pour essayer de contourner ce problème, celles-ci rendent l'utilisation de cette technique peu pratique et peu adaptée aux études de cette thèse. Cette méthode avait pourtant été utilisée par REBAH mais il n'étudiait que les produits de fission sans prendre en compte leurs réactions neutroniques.

La deuxième méthode consiste à utiliser l'exponentielle de matrice. En effet, le système des équations de Bateman peut s'écrire de la façon suivante :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} N = M N \\ N(t=0) = N^0 \end{cases}$$

Où,

$N$  est le vecteur des concentrations constitué de  $n$  lignes, où  $n$  est le nombre d'isotopes décrits,

$M$  la matrice des taux de réaction microscopiques, carrée de dimension  $n$ .

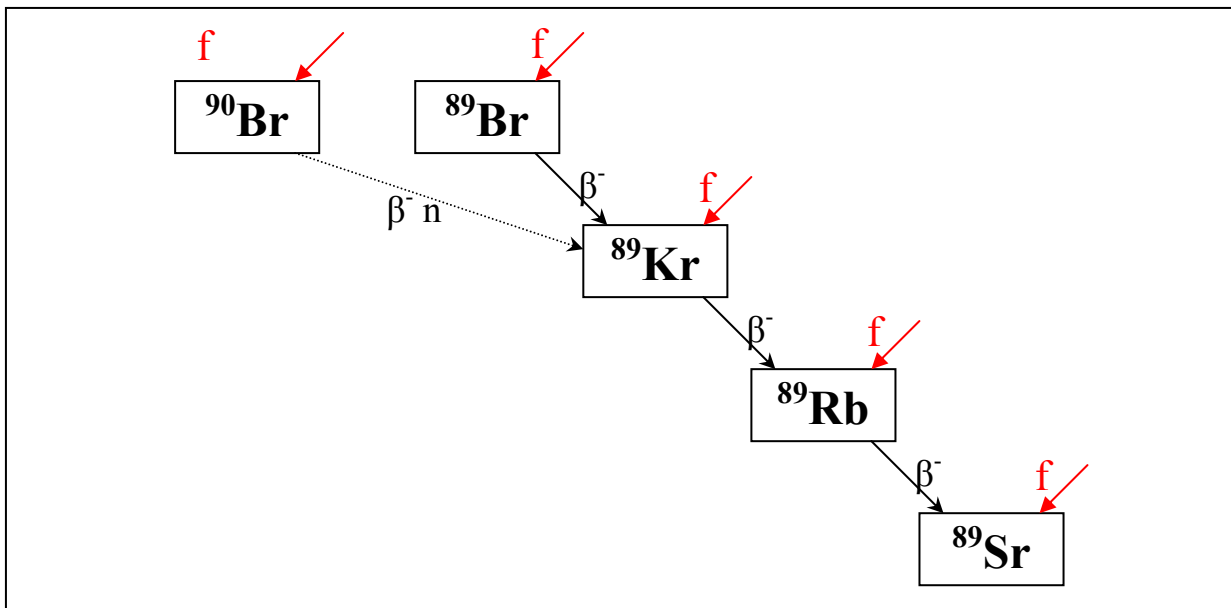


Fig. III.2 : Schéma de la chaîne de décroissance de la masse  $A = 89$  ( $f$  = fission).

Par exemple pour la chaîne de masse  $A = 89$ , dont la **figure III.2** présente la chaîne de décroissance, produite par la fission des cinq noyaux lourds prépondérants d'un assemblage fissile, le vecteur des concentrations et la matrice des taux de réaction ont les formes qui suivent.

### PARTIE III

Pour le vecteur des concentrations :

$${}^tN = \left( {}^{235}\text{U} \quad {}^{238}\text{U} \quad {}^{239}\text{Pu} \quad {}^{240}\text{Pu} \quad {}^{241}\text{Pu} \quad {}^{90}\text{Br} \quad {}^{89}\text{Br} \quad {}^{89}\text{Kr} \quad {}^{89}\text{Rb} \quad {}^{89}\text{Sr} \right)$$

Pour la matrice des taux de réaction :

$$M(10,10) = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$$

Avec,

La matrice des taux de réaction entre noyaux lourds,

$$A(5,5) = \begin{pmatrix} -\sigma_{235\text{U}}^{f+c}\phi & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\sigma_{238\text{U}}^{f+c}\phi & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{238\text{U}}^c\phi & -\sigma_{239\text{Pu}}^{f+c}\phi & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{239\text{Pu}}^c\phi & -\sigma_{240\text{Pu}}^{f+c}\phi & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \sigma_{240\text{Pu}}^c\phi & -\sigma_{241\text{Pu}}^{f+c}\phi - \lambda_{241\text{Pu}} \end{pmatrix}$$

La matrice des taux de réaction des produits de fission vers les noyaux lourds,

$$B(5,5) = (0)$$

La matrice des taux de réaction des noyaux lourds vers les produits de fission,

$$C(5,5) = \begin{pmatrix} Y_{235\text{U} \rightarrow 90\text{Br}} \sigma_{235\text{U}}^f \phi & \cdots & Y_{241\text{Pu} \rightarrow 90\text{Br}} \sigma_{241\text{Pu}}^f \phi \\ \vdots & & \vdots \\ Y_{235\text{U} \rightarrow 89\text{Sr}} \sigma_{235\text{U}}^f \phi & \cdots & Y_{241\text{Pu} \rightarrow 89\text{Sr}} \sigma_{241\text{Pu}}^f \phi \end{pmatrix}$$

La matrice des taux de réaction des produits de fission vers les produits de fission,

### PARTIE III

$$D(5,5) = \begin{pmatrix} -\lambda_{90Br} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\lambda_{Br} & 0 & 0 & 0 \\ \lambda_{90Br} f_{90Br \rightarrow Kr} & \lambda_{Br} f_{Br \rightarrow Kr} & -\lambda_{Kr} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{Kr} & -\lambda_{Rb} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \lambda_{Rb} & -\lambda_{Sr} \end{pmatrix}$$

La solution du système s'écrit sous la forme :

$$N(t) = e^{Mt} N^0$$

La résolution est effectuée par un développement en série de l'exponentielle de matrice.

Cette méthode a été régulièrement mise en défaut par le passé car le problème est de savoir jusqu'à quel terme du développement en série il est nécessaire d'aller pour être suffisamment précis. Les écarts entre les taux de réaction étant important, le nombre d'information et la précision (nombre de chiffres après la virgule) qu'il est nécessaire de conserver est très important. Ces calculs étaient rédhibitoires pour les ordinateurs il y a encore quelques années. Il n'est malheureusement pas possible de déterminer à l'avance si cette méthode fonctionne convenablement, c'est pourquoi il faudra la tester sur des exemples dans les chapitres suivants.

Une troisième méthode est l'utilisation d'un algorithme Runge-Kutta comme développé dans le solveur PEPIN du formulaire DARWIN. L'intérêt de cette méthode est sa précision. Elle procède à un découpage temporel du palier d'irradiation pour calculer des valeurs intermédiaires. Elle est par contre moins rapide que la précédente.

La méthode matricielle a été implémentée dans le code CYRUS. Il est cependant nécessaire de valider les calculs de CYRUS avec ceux du code de référence DARWIN.

#### b) Comparaison de la méthode matricielle avec la méthode Runge-Kutta

Le test a été effectué sur un assemblage de type cœur interne du réacteur PHENIX, irradié 114 jours et 993 jours soit les temps minimum et maximum d'irradiation. Le résultat des écarts

entre CYRUS (méthode matricielle) et DARWIN (méthode Runge-Kutta) est reporté dans les tableaux portés en ANNEXE 3. Les écarts présentés concernent les produits de fission légers et lourds et les noyaux lourds après 993 jours d'irradiation car plus le temps d'irradiation est long, plus les écarts peuvent être importants.

D'après ces tableaux, l'écart entre les deux codes est acceptable que ce soit pour les produits de fission ou pour les noyaux lourds. Cet écart est inférieur à 1 % pour tous les noyaux qui contribuent fortement à la puissance résiduelle. Certains noyaux ont des écarts plus grands mais ces noyaux sont soit stables, soit très peu concentrés (et donc peu importants pour la puissance résiduelle). Il y a un écart systématique pour les produits de fission légers ayant le nombre de masse le plus grand ( $A \sim 112$ ). Cela est dû à la non-prise en compte de la fission de  $^{241}\text{Am}$ . En effet, d'après la **figure III.3**, plus le noyau fissionnant est lourd, plus la bosse des produits de fission légers est décalée. Néanmoins, ces noyaux contribuent peu et les écarts ne sont pas trop importants même après une longue irradiation ( $< 10\%$ ).

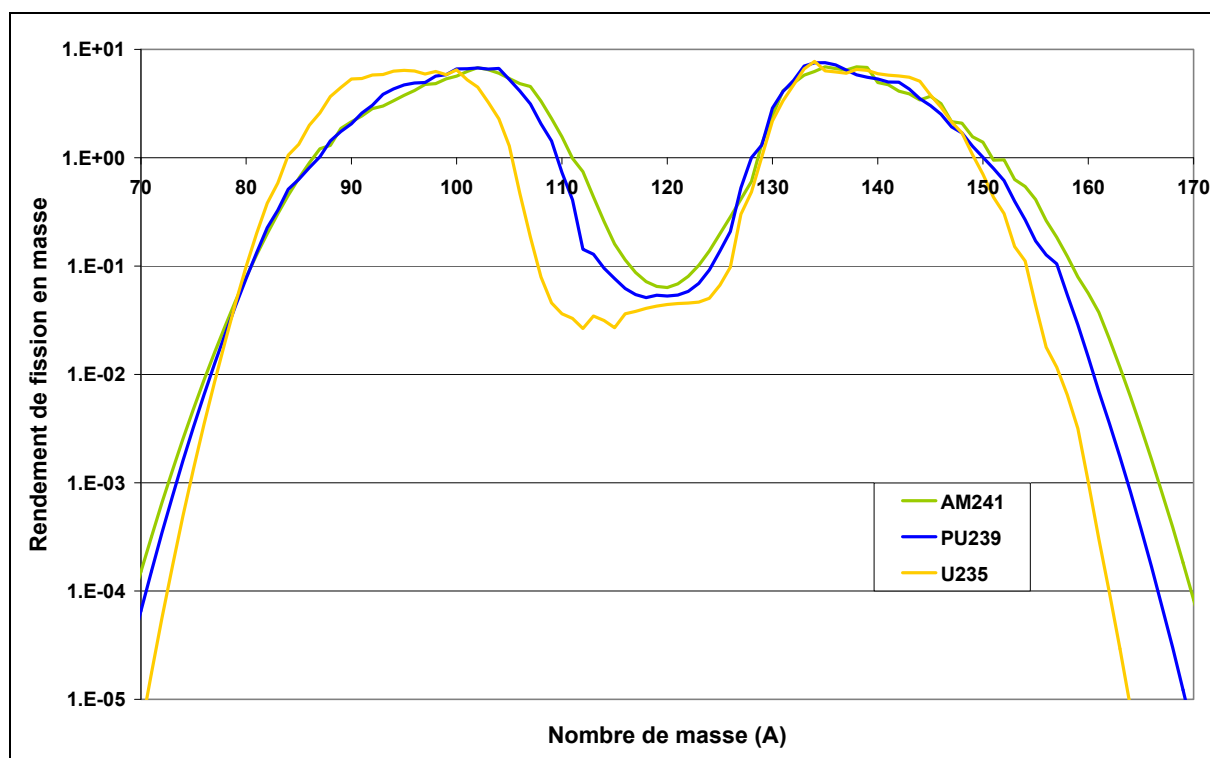


Fig. III.3 : Courbes des rendements de fission en masse de  $^{235}\text{U}$ , de  $^{239}\text{Pu}$  et de  $^{241}\text{Am}$  pour une fission due à un neutron de 400 keV.

Concernant les petits écarts entre les concentrations calculées avec la méthode matricielle et avec la méthode Runge-Kutta de DARWIN, il est difficile d'expliquer avec précision s'ils

sont dus à une modélisation trop simplifiée ou à la précision de la méthode de calcul de l'exponentielle de matrice. Néanmoins l'écart est suffisamment faible pour accepter l'utilisation de la méthode matricielle par la suite.

## 2) Comparaison des méthodes de calcul des coefficients de sensibilité

L'objectif de ce sous-chapitre est de choisir une méthode de calcul des sensibilités qui s'écrit, pour la sensibilité de la concentration à un paramètre, de la forme suivante :

$$S(N / p) = \frac{p_{ref}}{N_{ref}} \left. \frac{dN}{dp} \right|_{p_{ref}}$$

Où,

N est la concentration,

p est la donnée nucléaire,

ref est la donnée ou la concentration du calcul de référence.

La méthode directe de calcul de la sensibilité d'une concentration à une donnée nucléaire consiste à réaliser un calcul de concentration de référence puis un second calcul de concentration avec la donnée nucléaire à étudier perturbée. La sensibilité est ensuite calculée comme il suit :

$$S(N / p) = \frac{N_{pert} - N_{ref}}{p_{pert} - p_{ref}} * \frac{p_{ref}}{N_{ref}}$$

Où,

p<sub>pert</sub> est la donnée perturbée,

N<sub>pert</sub> est la concentration du calcul perturbé.

L'avantage de cette méthode est qu'elle est rapide puisqu'elle ne nécessite que deux calculs du bilan matière réalisés directement aux temps d'irradiation demandés grâce à l'exponentielle de matrice.

Cependant, cette méthode pose deux problèmes : le calcul de la dérivée n'est pas réalisé à l'endroit attendu (c'est-à-dire au point des paramètres de référence) et elle fait intervenir l'hypothèse de linéarité entre la donnée nucléaire et la concentration.

Le premier problème provient de la non-symétrie de la perturbation (voir **figure III.4**). Le calcul de la dérivée est réalisé avec le calcul de référence et un calcul perturbé. La dérivée n'est donc pas calculée à l'endroit des paramètres de référence mais au paramètre de référence additionné de la perturbation divisée par deux. Pour calculer la dérivée au point des paramètres de référence, il faut faire un premier calcul de la concentration avec un paramètre perturbé positivement (à la place du calcul de référence) et un deuxième calcul de la concentration avec le même paramètre perturbé négativement. Le problème de la réalisation de deux calculs perturbés par paramètres, c'est qu'à la place de réaliser  $n + 1$  calculs (un calcul perturbé pour chacun des  $n$  paramètres plus un calcul de référence) il faut en réaliser  $2n$ . La première méthode va donc être conservée. Qui plus est, le deuxième problème énoncé va rendre ce premier problème caduc.

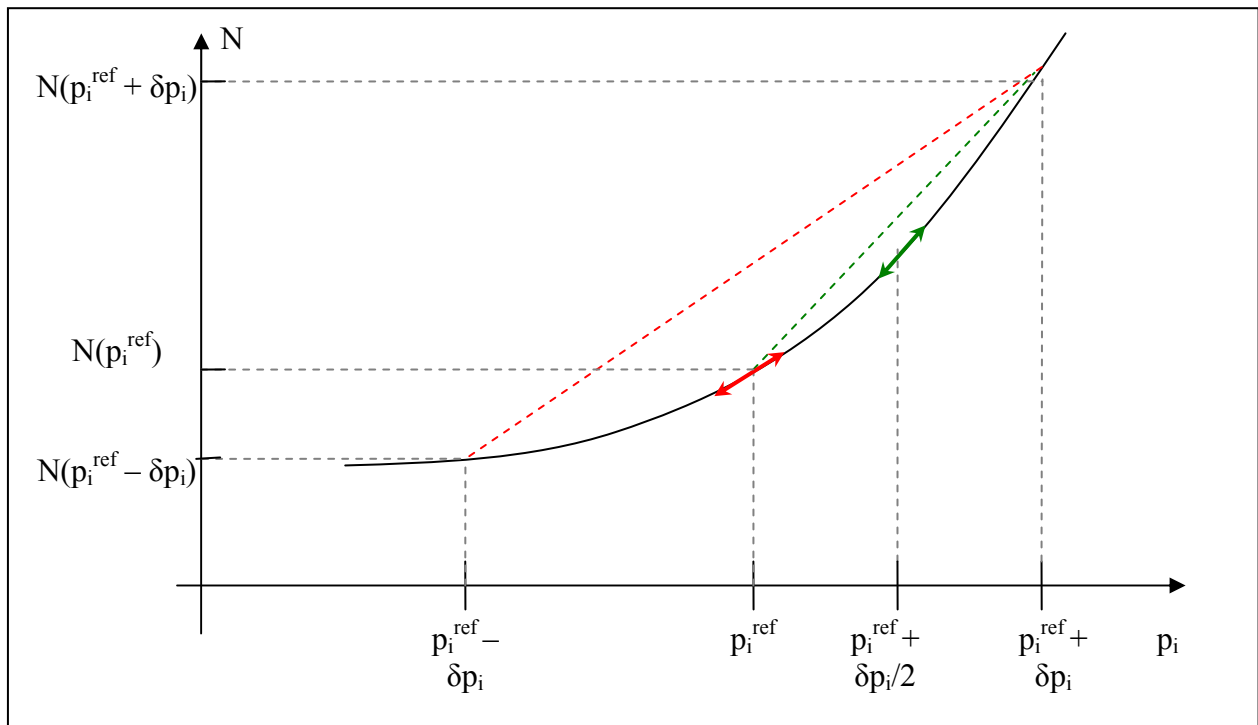


Fig. III.4 : Schéma de la position du calcul de la dérivée.

En effet, le deuxième problème est la linéarité de la méthode directe de calcul de la sensibilité. Comme représentée sur la **figure III.5**, si la relation entre  $N$  et  $p_i$  n'est pas linéaire (courbe noire + points jaunes) et que la perturbation choisie est trop grande, alors la dérivée

calculée avec la méthode directe (ligne verte) sera biaisée par rapport à la sensibilité attendue (ligne orange). En conséquence, le calcul de la sensibilité sera faux.

Ce problème de non-linéarité rend le problème précédent caduc car : si les non-linéarités sont importantes, quelque soit la méthode de calcul, le résultat sera faux ; et si les non-linéarités sont faibles, alors la relation entre la concentration et le paramètre peut être considérée comme linéaire, et alors les dérivées calculées par la première et par la deuxième méthode seront égales.

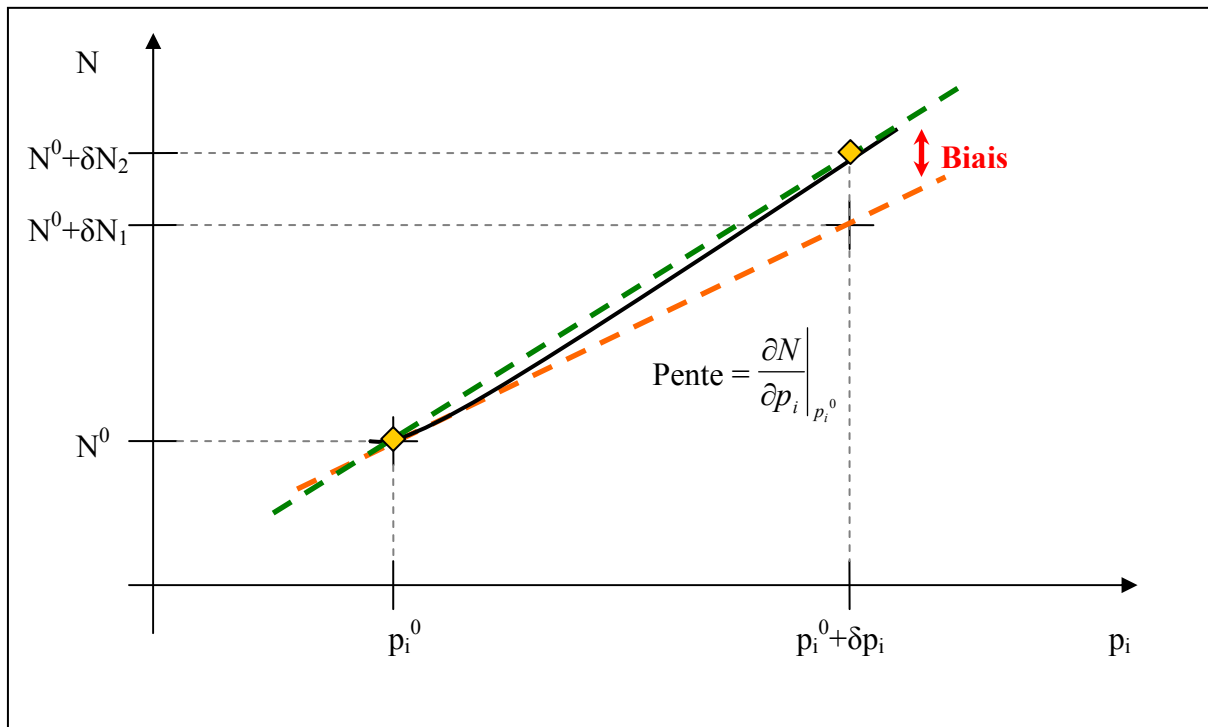


Fig. III.5 : Représentation des problèmes dus à l'hypothèse de linéarité.

Cependant, un autre problème est soulevé qui concerne la valeur de la perturbation de la donnée nucléaire qui doit être choisie. Comme il vient d'être montré, le risque de choisir une perturbation trop forte de la donnée nucléaire, dans le cas de relations non-linéaires, est de calculer une sensibilité fortement biaisée. De même, ne pas perturber suffisamment la donnée nucléaire c'est prendre le risque d'avoir un effet trop faible sur la concentration et de maximiser les erreurs de précision de la méthode numérique. Il a été choisi de perturber les données nucléaires à 1 sigma et de vérifier cette hypothèse sur un exemple simplifié en comparant les résultats obtenus avec ceux de la méthode adjointe. L'hypothèse de linéarité sera analysée plus en détail dans le chapitre 3 de cette partie.

La méthode adjointe donne la garantie d'un calcul exact de la sensibilité à l'ordre 1 et à la valeur moyenne de la donnée nucléaire. La sensibilité calculée est toujours une sensibilité du premier ordre, seulement l'hypothèse de linéarité n'est plus présente dans le calcul de la sensibilité mais seulement dans le calcul de propagation des incertitudes.

La formule suivante permet de calculer la sensibilité suivant la méthode adjointe. Son obtention est décrite dans la partie ANNEXE 2.

$$S(N_i / p) = \frac{\int \langle N^* | M_p N \rangle}{N_i}$$

où,

$N^*$  est le vecteur concentration adjointe calculé dans le but d'étudier l'isotope  $i$ ,

$N$  est le vecteur concentration,

$p$  est la donnée nucléaire étudiée.

Le problème de cette méthode est qu'elle est beaucoup plus longue que la précédente. En effet, elle nécessite de calculer les concentrations adjointes dédiées à l'étude de chacun des noyaux. De plus, la présence d'une intégrale dans la formule oblige à réaliser des pas de calcul et à conserver les valeurs intermédiaires. Cependant, comme présenté dans la **figure III.6**, la variation des concentrations suivant le temps est logarithmique avec une évolution très rapide en fin d'irradiation. Qui plus est, cette évolution très rapide dépend de la période des noyaux ce qui oblige à adapter le pas de temps en fonction du noyau étudié.

Le test a été réalisé sur la chaîne de décroissance de masse  $A = 89$ . Une composition de type cœur interne du réacteur PHENIX a été irradiée pendant 1 an sous un flux de  $3,0 \cdot 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/s et avec un spectre rapide. Le but est de pouvoir valider la méthode directe de calcul de la sensibilité par rapport à la méthode adjointe. Le **tableau III.2** présente, pour l'exemple, le résultat du calcul des valeurs de sensibilité des concentrations en fin d'irradiation par rapport aux données nucléaires.



PARTIE III

param/iso	U235	U238	PU239	PU240	PU241	BR90	BR89	KR89	RB89	SR89
U235_capture	-0,051	0,000	0,000	0,000	0,000	-0,001	-0,001	-0,001	-0,001	-0,001
U235_fission_th	-0,034	0,000	0,000	0,000	0,000	0,003	0,004	0,004	0,004	0,004
U235_fission rap	-0,147	0,000	0,000	0,000	0,000	0,017	0,015	0,020	0,019	0,020
U235_r rap BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,021	0,000	0,001	0,001	0,001
U235_r rap BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,018	0,006	0,006	0,006
U235_r rap KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,017	0,015	0,016
U235_r rap RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,001
U235_r rap SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r th BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,004	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r th BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,005	0,002	0,002	0,002
U235_r th KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,003	0,003	0,003
U235_r th RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r th SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_capture	0,000	-0,031	0,139	0,009	0,001	0,045	0,068	0,091	0,095	0,077
U238_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_fission rap	0,000	-0,005	0,000	0,000	0,000	0,447	0,304	0,175	0,159	0,158
U238_r rap BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,449	0,000	0,017	0,016	0,015
U238_r rap BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,306	0,106	0,095	0,095
U238_r rap KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,053	0,048	0,047
U238_r rap RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,001
U238_r rap SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_capture	0,000	0,000	-0,046	0,117	0,023	-0,011	-0,016	-0,023	-0,024	-0,020
PU239_fission_th	0,000	0,000	-0,022	-0,001	0,000	0,029	0,036	0,073	0,079	0,083
PU239_fission rap	0,000	0,000	-0,140	-0,009	-0,001	0,321	0,422	0,501	0,512	0,533
PU239_r rap BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,382	0,000	0,015	0,013	0,013
PU239_r rap BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,503	0,174	0,157	0,157
PU239_r rap KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,413	0,373	0,373
PU239_r rap RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,073	0,073
PU239_r rap SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001
PU239_r th BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,038	0,000	0,001	0,001	0,001
PU239_r th BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,048	0,017	0,015	0,015
PU239_r th KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,071	0,064	0,064
PU239_r th RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,015	0,015
PU239_r th SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_capture	0,000	0,000	0,000	-0,046	0,338	0,013	0,013	0,010	0,010	0,008
PU240_fission_th	0,000	0,000	0,000	-0,001	0,000	0,001	0,002	0,002	0,002	0,002
PU240_fission rap	0,000	0,000	0,000	-0,035	-0,007	0,054	0,068	0,061	0,059	0,059
PU240_r rap BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,059	0,000	0,002	0,002	0,002
PU240_r rap BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,073	0,025	0,023	0,022
PU240_r rap KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,037	0,034	0,033
PU240_r rap RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,005	0,005
PU240_r rap SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_capture	0,000	0,000	0,000	0,000	-0,043	-0,002	-0,002	-0,002	-0,002	-0,001
PU241_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	-0,035	0,005	0,005	0,005	0,005	0,005
PU241_fission rap	0,000	0,000	0,000	0,000	-0,159	0,033	0,033	0,027	0,025	0,026
PU241_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,039	0,002	0,002	0,002	0,001	0,001
PU241_r rap BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,041	0,000	0,002	0,001	0,001
PU241_r rap BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,041	0,014	0,013	0,012
PU241_r rap KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,018	0,016	0,016
PU241_r rap RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,002	0,001
PU241_r rap SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r th BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,006	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r th BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,007	0,002	0,002	0,002
PU241_r th KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,004	0,003	0,003
PU241_r th RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r th SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
BR90_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	1,000	0,000	0,000	0,000	0,000
BR89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	1,000	0,000	0,000	0,000

# PARTIE III

KR89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	1,000	0,000	0,000
RB89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	1,000	0,000
SR89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,975
BR90_br_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,038	0,035	0,035
BR89_br_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,346	0,312	0,311

Tab. III.2 : Valeurs de sensibilités de la concentration en fin d'irradiation par rapport aux paramètres calculées par la méthode directe (**Abréviation** : r\_rap : rendement rapide (400 keV), r\_th : rendement thermique (0,025 eV), br : rapport de branchement, « capture », « fission\_rap », « fission\_th » : sections efficaces. **Code couleurs** : Violet = S > 0,1 OU S < - 0,1 ; Or = S > 0,01 OU S < - 0,01 ; VERT = S ≠ 0).

Paramètres	U235	U238	PU239	PU240	PU241	BR90	BR89	KR89	RB89	SR89
U235_capture	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,001	0,000	0,000	0,000
U235_fission_rap	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,006	0,002	0,000	0,000	0,000
U235_r_rap_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,006	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_rap_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,002	0,000	0,000	0,000
U235_r_rap_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_rap_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_rap_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_th_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_th_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000	0,000	0,000
U235_r_th_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_th_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U235_r_th_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_capture	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_fission_rap	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,121	0,039	0,000	0,000	0,000
U238_r_rap_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,121	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_r_rap_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,039	0,000	0,000	0,000
U238_r_rap_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_r_rap_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
U238_r_rap_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_capture	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,010	0,006	0,000	0,000	0,000
PU239_fission_rap	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,101	0,062	-0,002	-0,003	-0,003
PU239_r_rap_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,103	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_r_rap_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,064	0,000	0,000	0,000
PU239_r_rap_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000	0,000
PU239_r_rap_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_r_rap_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_r_th_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,010	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_r_th_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,006	0,000	0,000	0,000
PU239_r_th_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_r_th_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU239_r_th_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_capture	0,000	0,000	0,000	0,000	-0,001	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_fission_rap	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,015	0,009	0,000	0,000	0,000
PU240_r_rap_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,016	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_r_rap_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,009	0,000	0,000	0,000
PU240_r_rap_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_r_rap_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU240_r_rap_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000

### PARTIE III

PU241_capture	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_fission_th	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,002	0,001	0,000	0,000	0,000
PU241_fission_rap	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,011	0,005	0,000	0,000	0,000
PU241_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_rap_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,011	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_rap_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,005	0,000	0,000	0,000
PU241_r_rap_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_rap_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_rap_SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_th_BR90	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,002	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_th_BR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000	0,000	0,000
PU241_r_th_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r_th_RB89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
PU241_r th SR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
BR90_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,270	0,000	0,000	0,000	0,000
BR89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,128	0,001	0,000	0,000
KR89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,003	0,001	0,000
RB89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000
SR89_periode	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	-0,001
BR90_br_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
BR89_br_KR89	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,001	0,000	0,000

Tab. III.3 : Comparaison des valeurs de sensibilité de la concentration en fin d'irradiation par rapport aux paramètres calculées par la méthode directe et par la méthode adjointe (**Code couleurs** : Bleu : Valeur absolue supérieure à 0,001).

Le **tableau III.3** ci-dessus montre la bonne cohérence entre les deux méthodes pour la plupart des données du tableau. Cependant, il y a un écart non-négligeable sur certaines d'entre elles. La différence est localisée sur les noyaux ayant les périodes les plus courtes et cela quelle que soit la donnée nucléaire perturbée. Il paraît nécessaire de calculer les sensibilités de ces noyaux avec la méthode de résolution analytique de façon à savoir laquelle des deux méthodes précédentes a obtenu le meilleur résultat.

Prenons l'exemple d'un produit de fission créé par la fission de noyaux lourds et par la décroissance d'un noyau père. Supposons de plus que la variation des noyaux lourds est trop faible pour être prise en compte. Les équations d'évolution du système s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{dN_1}{dt}(t) = \sum_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow 1}^i N_{NL}(t) - \lambda_1 N_1(t) \\ \frac{dN_2}{dt}(t) = \sum_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow 2}^i N_{NL}(t) + \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \\ N_1^0 = N_2^0 = 0 \end{cases}$$

Pour alléger les écritures, nous écrirons :

$$\sum_{NL} \sigma_{NL} \varphi Y_{NL \rightarrow 1}^i N_{NL}(t) = C_1^{te} \quad \text{et} \quad \sum_{NL} \sigma_{NL} \varphi Y_{NL \rightarrow 2}^i N_{NL}(t) = C_2^{te}$$

La solution de ce système est la suivante :

$$N_1(t) = \frac{C_1^{te}}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t})$$

$$N_2(t) = \frac{C_1^{te} + C_2^{te}}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t}) + \frac{C_1^{te}}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})$$

Le calcul des sensibilités pour les concentrations par rapport aux constantes de décroissance s'en déduit :

$$S(N_1 / \lambda_1) = - \frac{1 - (1 + \lambda_1^2) e^{-\lambda_1 t}}{1 - e^{-\lambda_1 t}} \xrightarrow{t \rightarrow \infty} -1$$

$$S(N_2 / \lambda_2) = \frac{\lambda_2}{N_2} \left[ (C_1^{te} + C_2^{te}) \frac{1 - (1 + \lambda_2^2) e^{-\lambda_2 t}}{1 - e^{-\lambda_2 t}} + C_1^{te} \frac{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2) e^{-\lambda_2 t} + (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})}{(\lambda_1 - \lambda_2)^2} \right] \xrightarrow{t \rightarrow \infty} -1$$

$$S(N_2 / \lambda_1) = \frac{\lambda_1}{N_2} C_1^{te} \frac{-\lambda_1 (\lambda_1 - \lambda_2) e^{-\lambda_1 t} - (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})}{(\lambda_1 - \lambda_2)^2} \xrightarrow{t \rightarrow \infty} 0$$

$$(\text{Attention : } S(N / \lambda) = -S(N / T_{1/2}))$$

D'après le résultat analytique, si le temps d'irradiation permet la saturation des noyaux, c'est-à-dire si le temps d'irradiation est très supérieur aux périodes, alors les concentrations des noyaux ont une sensibilité de 1 à leur période et de 0 aux autres périodes. Cela valide le résultat obtenu avec la méthode directe et montre que la période du père est importante pour la vitesse de formation du fils, mais pas pour la valeur de saturation de sa concentration.

L'écart observé sur les sensibilités des noyaux à temps de vie court ne provient donc pas du calcul simplifié mais du calcul de référence (méthode adjointe). En effet, c'est le traitement qui a été fait du calcul de l'intégrale qui n'est pas suffisamment juste. Ceci est dû à la forme des courbes de concentration adjointes présentées sur la **figure III.6**.

En effet, si la variation est très rapide en fin d'irradiation, la majeure partie de l'information provient des 364 jours précédents où les valeurs de l'importance sont faibles mais sur des durées très longues. Or comme ces courbes ont une forme exponentielle et que l'intégration a été faite par une méthode de Gauss avec une discrétisation linéaire du temps, une partie de l'information est perdue. Ceci pourrait être amélioré mais ce n'est pas le but.

Ainsi, le calcul adjoint étant bon pour les autres noyaux, et le calcul simplifié ayant très peu d'écart avec celui-ci et avec la théorie pour les noyaux à vie courte, le calcul simplifié de sensibilité peut être considéré comme étant validé.

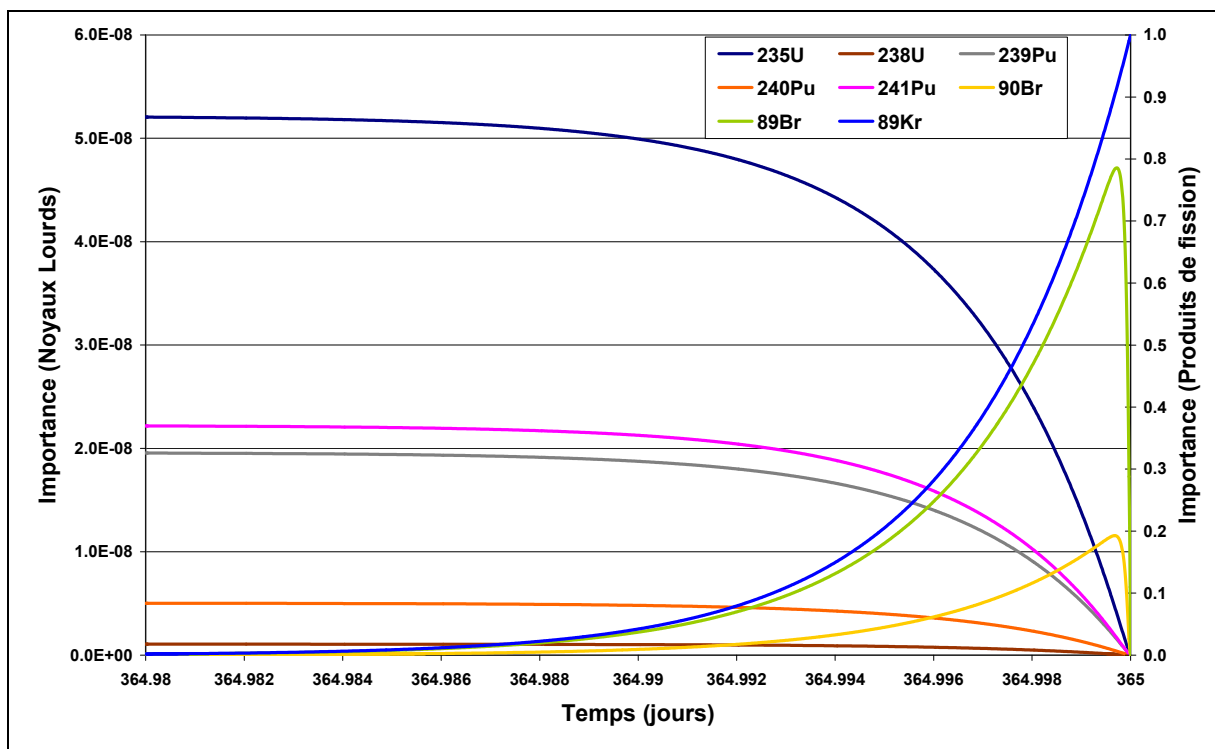


Fig. III.6 : Concentrations adjointes pour l'étude du  $^{89}\text{Kr}$  (Importance des noyaux lourds (échelle de gauche), Importance des produits de fission (échelle de droite)).

## B – Méthode de calcul de la matrice de sensibilité de la puissance résiduelle

Le calcul des termes apparaissant dans la matrice de sensibilité est facilité par la forme de l'expression de la puissance résiduelle comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent. Seulement, le code CYRUS n'est pas adapté au calcul de la puissance résiduelle puisque seuls les principaux contributeurs sont décrits.

Afin d'obtenir un calcul précis de ces termes et de ne pas biaiser le calcul, ceux-ci sont calculés avec le code DARWIN. Un calcul de puissance résiduelle utilisant le même schéma que celui défini dans CYRUS est réalisé afin d'obtenir la puissance résiduelle totale et la puissance résiduelle de chacun des isotopes décrits dans CYRUS pour tous les temps de refroidissement analysés. Le rapport des deux permet d'obtenir directement les sensibilités de la puissance résiduelle à chacun des isotopes.

Il paraît préférable de faire ainsi pour trois raisons. Premièrement, un seul calcul DARWIN est très rapide. Deuxièmement, DARWIN est la référence du CEA pour les calculs d'évolution et il a été montré précédemment que le calcul des concentrations par CYRUS admettait un écart. Troisièmement, tous les noyaux n'étant pas décrits dans CYRUS, la puissance résiduelle totale ne serait décrite qu'à 99 % et la sensibilité des noyaux serait plus élevée ce qui augmenterait l'incertitude.

### **III – Description et obtention des matrices de covariance**

Les matrices de covariance sont formées par deux sortes de données, les variances et les covariances. Les variances, sur la diagonale de la matrice, représentent les incertitudes des données. Elles sont définies comme le carré des incertitudes. Les covariances, hors de la diagonale de la matrice, représentent le lien qu'il y a entre l'incertitude d'une donnée et celle d'une autre. Elles sont non-nulles si les deux données sont mesurées avec le même matériel ou si l'une est calculée par rapport à l'autre ou enfin, si elles sont calculées toutes deux à partir des mêmes données.

Ces valeurs sont présentées ci-dessous pour les données nucléaires nécessaires au calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle : les rendements de fission indépendants et cumulés, les périodes, les énergies moyennes de décroissance, les rapports de branchement, les sections efficaces et les concentrations.

#### **A – Incertitude des rendements de fission**

Les incertitudes des rendements de fission sont obtenues à partir de la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.1.1 (voir **figure III.7**). Tous les rendements de fission inférieurs à

$10^{-4}$  (1 produit de fission produit pour 10 000 fissions) ont une incertitude de l'ordre de 36 %. Cette incertitude provient du modèle utilisé pour calculer les valeurs des rendements de fission [22]. En effet, il existe très peu de mesures pour des rendements dont la valeur est inférieure à  $10^{-4}$  car le nombre d'évènements les concernant lors des expériences est extrêmement faible. Deux types de noyaux ont des rendements si faibles : les noyaux loin de la vallée de stabilité, et les noyaux proches de la vallée de stabilité. Concernant les noyaux proches de la vallée de stabilité, ils seront créés de façon privilégiée par leurs noyaux pères ayant des rendements de fission plus grands. L'incertitude de leurs rendements de fission n'est donc pas intéressante pour le calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle car ils n'interviendront que de façon négligeable dans la concentration des noyaux. Au contraire, les noyaux loin de la vallée de stabilité sont majoritairement créés par fission directe. De plus, ils ont les périodes les plus courtes donc interviennent avant tous les autres noyaux. En conséquence, l'incertitude de leurs rendements de fission peut peser énormément sur le calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle aux temps très courts. Pour les rendements de fission dont la valeur est supérieure à  $10^{-4}$ , l'incertitude dépend fortement du nombre d'expériences réalisées sur chaque produit de fission et pour chaque noyau fissile.

Dans le cadre de ce travail de thèse, les rendements de fission sont supposés non corrélés pour plusieurs raisons. Premièrement, très peu d'expériences de mesure des rendements de fission fournissent des données de corrélation. Deuxièmement, l'évaluation des rendements de fission avec en particulier la normalisation de la somme des rendements à 2 (car pour une fission, deux rendements de fission sont émis si la fission ternaire (3 produits de fission émis) est négligée), la conservation des rendements en charge des fragments lourds et légers, n'a pas encore donné lieu à une étude de la corrélation des rendements entre eux. Ces travaux sont en cours de réalisation [23] et sont donc indisponibles pour le moment. Troisièmement, les travaux de REBAH consistant à développer plusieurs matrices de corrélation entre les rendements de fission ne sont pas conclusifs.

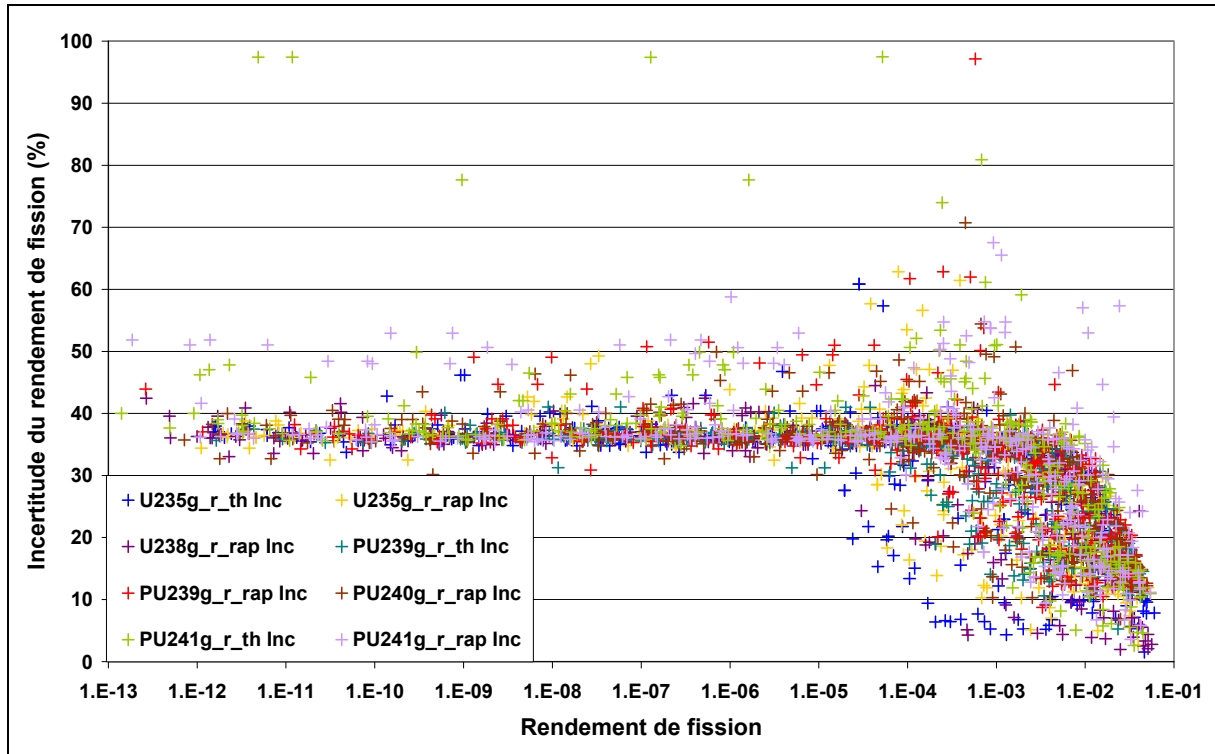


Fig. III.7 : Incertitudes des rendements indépendants de fission pour les noyaux fissionnant dans les RNR.

## B – Incertitude des périodes de décroissance

Les incertitudes des périodes sont obtenues à partir de la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.1.1. Cependant, parmi les 369 noyaux retenus pour notre étude, 4 noyaux ont des périodes sans donnée d'incertitude. Ces quatre noyaux sont les :  $^{96m}\text{Rb}$ ,  $^{103m,105m}\text{Rh}$ ,  $^{144m}\text{Cs}$ . La moyenne des incertitudes des périodes étant de 2,4 %, et plus de 95 % des périodes ayant une incertitude inférieure à 10 % (voir **figure III.8**), une incertitude de 10 % leur a été attribuée. Cela est très conservatif puisque la bibliothèque ENDF/B-VII.0 propose des incertitudes de 0,02 % et 0,7 % pour les  $^{103m,105m}\text{Rh}$ . Cependant, puisque les périodes de ces noyaux sont faibles (0,2 s, 3370 s, 40 s, 1 s) et que d'après la **figure III.9**, les noyaux à période courte sont ceux ayant les données les moins précises, il paraît préférable d'être fortement conservatif.



### PARTIE III

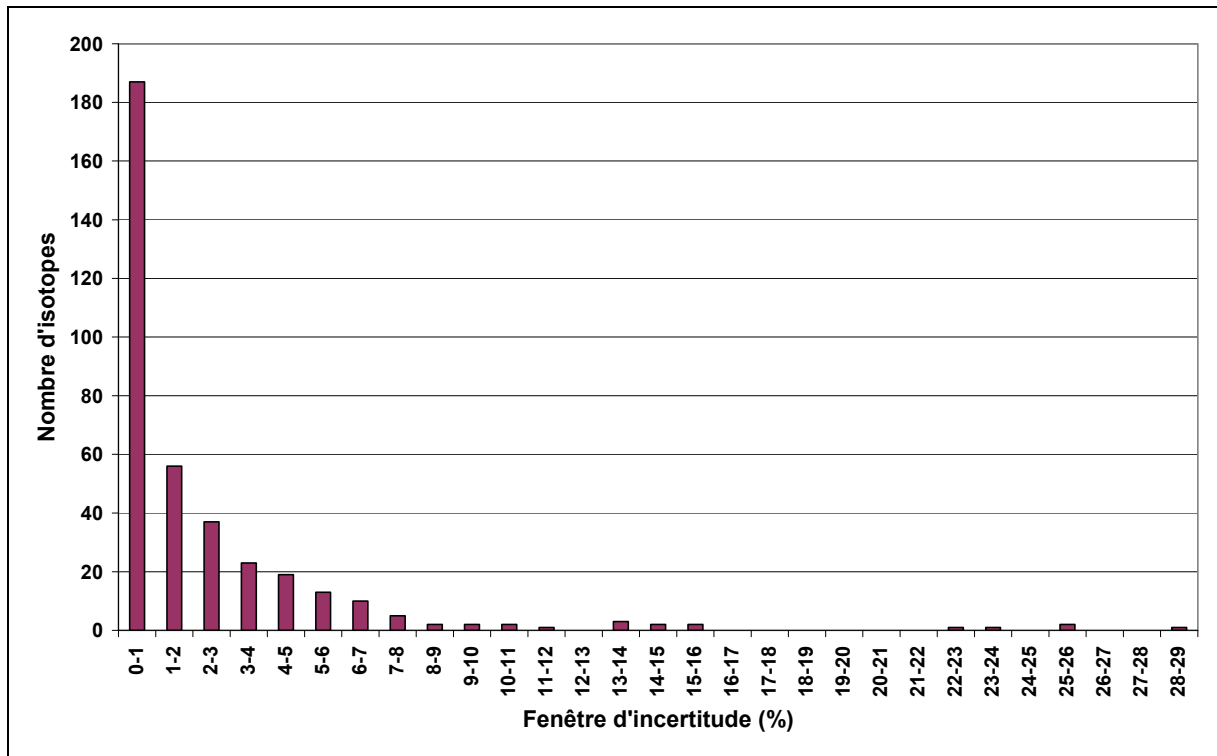


Fig. III.8 : Incertitude de la période des 369 noyaux d'intérêt pour cette étude.

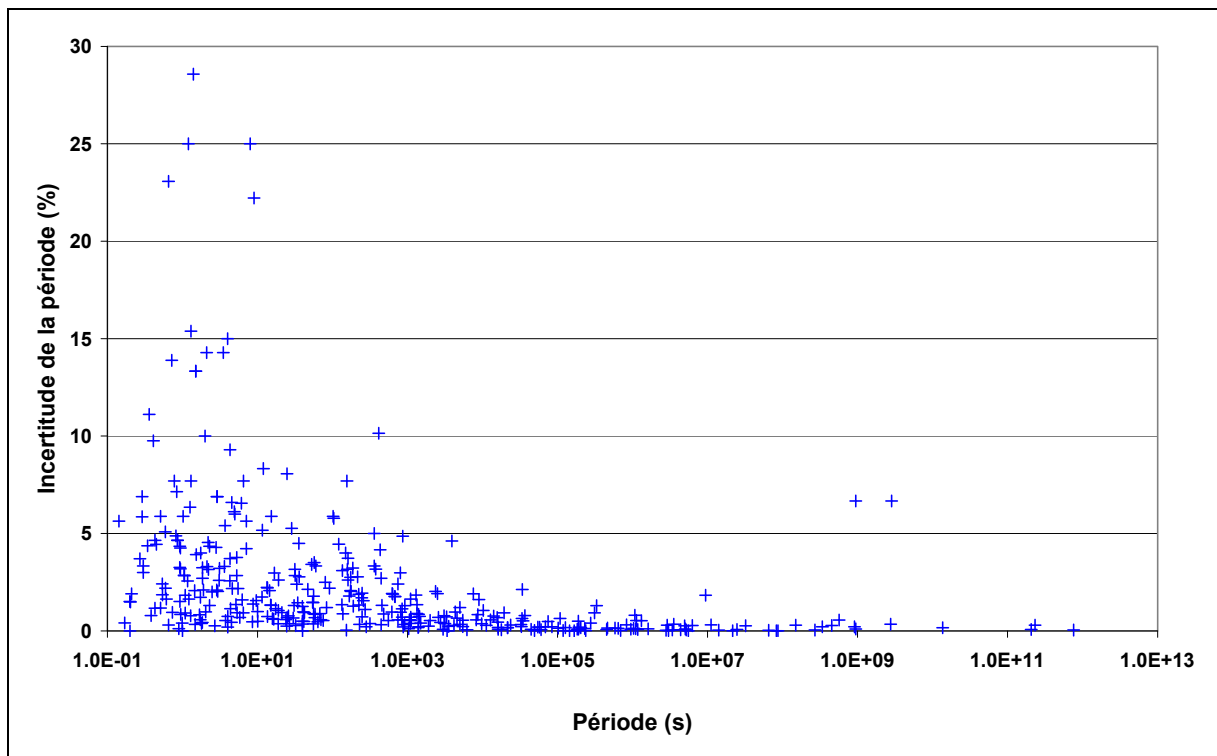


Fig. III.9 : Incertitudes des périodes des noyaux en fonction de leur propre période.

## C – Incertitude sur les énergies de décroissance

L'incertitude sur l'énergie moyenne de décroissance est obtenue à partir de l'incertitude moyenne des énergies alpha, bêta et gamma grâce à la formule de propagation des incertitudes :

$$VAR(E_{tot}) = \sum_i S(E_{tot} / E_i)^2 VAR(E_i)$$

Avec :

$$S(E_{tot} / E_i) = \left( \begin{array}{c} S(E_{tot} / E_{\alpha}) \\ S(E_{tot} / E_{\beta}) \\ S(E_{tot} / E_{\gamma}) \end{array} \right)$$

$$VAR(E_i) = \left( \begin{array}{ccc} VAR(E_{\alpha}) & COV(E_{\alpha}, E_{\beta}) & COV(E_{\alpha}, E_{\gamma}) \\ COV(E_{\alpha}, E_{\beta}) & VAR(E_{\beta}) & COV(E_{\beta}, E_{\gamma}) \\ COV(E_{\alpha}, E_{\gamma}) & COV(E_{\beta}, E_{\gamma}) & VAR(E_{\gamma}) \end{array} \right)$$

La plupart des énergies décrites dans JEFF3.1.1 sont obtenues séparément pour chaque rayonnement. Ensuite, de petites corrections peuvent être réalisées de façon à ce que les niveaux d'excitation soient décrits correctement. Néanmoins, il ne semble pas nécessaire de corrélérer les différents rayonnements. Ainsi, l'incertitude de l'énergie moyenne de décroissance des noyaux est obtenue par la même formule de propagation que précédemment, mais en supposant une corrélation nulle entre les rayonnements.

La **figure III.10** décrit l'incertitude de l'énergie en fonction de la période. La moyenne des incertitudes sur l'énergie totale est de 3,35 %. Sur les 369 noyaux à modéliser, 75 n'ont pas d'incertitude sur l'énergie dans JEFF3.1.1. Ces lacunes dans JEFF3.1.1 s'expliquent en partie par la difficulté à mesurer leurs énergies de décroissance étant donné que leurs périodes de décroissance sont courtes, majoritairement inférieures à 10 secondes. Afin d'être conservatif, une incertitude de 10 % sur l'énergie moyenne de décroissance leur est allouée.

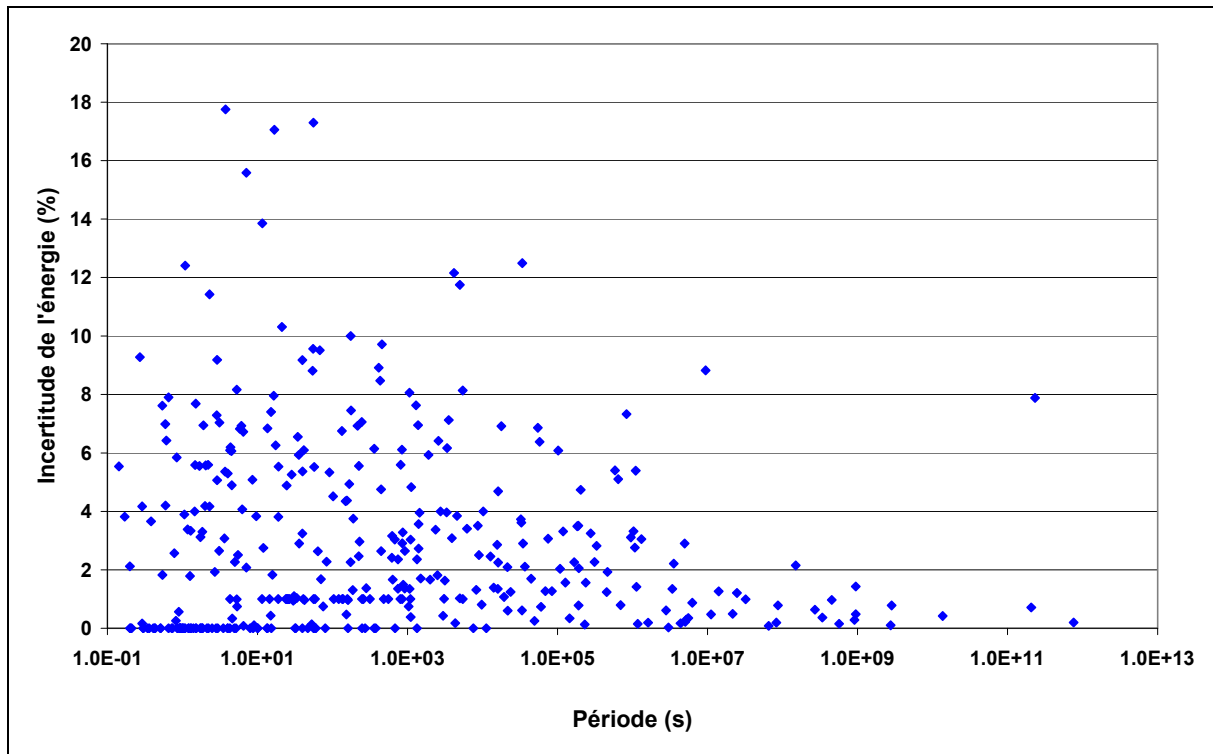


Fig. III.10 : Incertitude de l'énergie de décroissance des noyaux suivant leur période de décroissance.

## D – Incertitude sur les rapports de branchement

Les rapports de branchement permettent de rendre compte de deux phénomènes physiques. Le premier est la possibilité pour certains noyaux, en particulier les fragments de fission légers, d'avoir une décroissance bêta et une décroissance bêta plus neutron. Le deuxième est la possibilité pour un noyau de décroître vers un noyau stable et vers un noyau métastable. Ces rapports de branchement sont fournis dans la bibliothèque JEFF3.1.1 (voir **figure III.11**). Les incertitudes des rapports de branchement dépendent du nombre d'événements mesurés, en conséquence, les grands rapports de branchement sont précis alors que les faibles rapports de branchement sont mal connus.

Cependant, beaucoup de ces rapports de branchement n'ont pas d'incertitude associée dans JEFF3.1.1 : 122 sur 250. Pour ceux-ci une incertitude de 0,001 % leur a été allouée. Ceci est clairement non conservatif. Cependant, il ne semble pas opportun de maximiser l'incertitude de ce paramètre pour le moment à la différence de ce qui a été réalisé pour les périodes et les énergies. En effet, ce paramètre n'étant pas pris en compte dans les études précédentes, il serait préférable qu'il n'ait pas trop d'impact sur nos résultats. Le fait de les modéliser

permettra d'obtenir la sensibilité et nous donner de précieuses informations quant à la nécessité de les améliorer. Par la suite, une incertitude pourra être ajoutée.

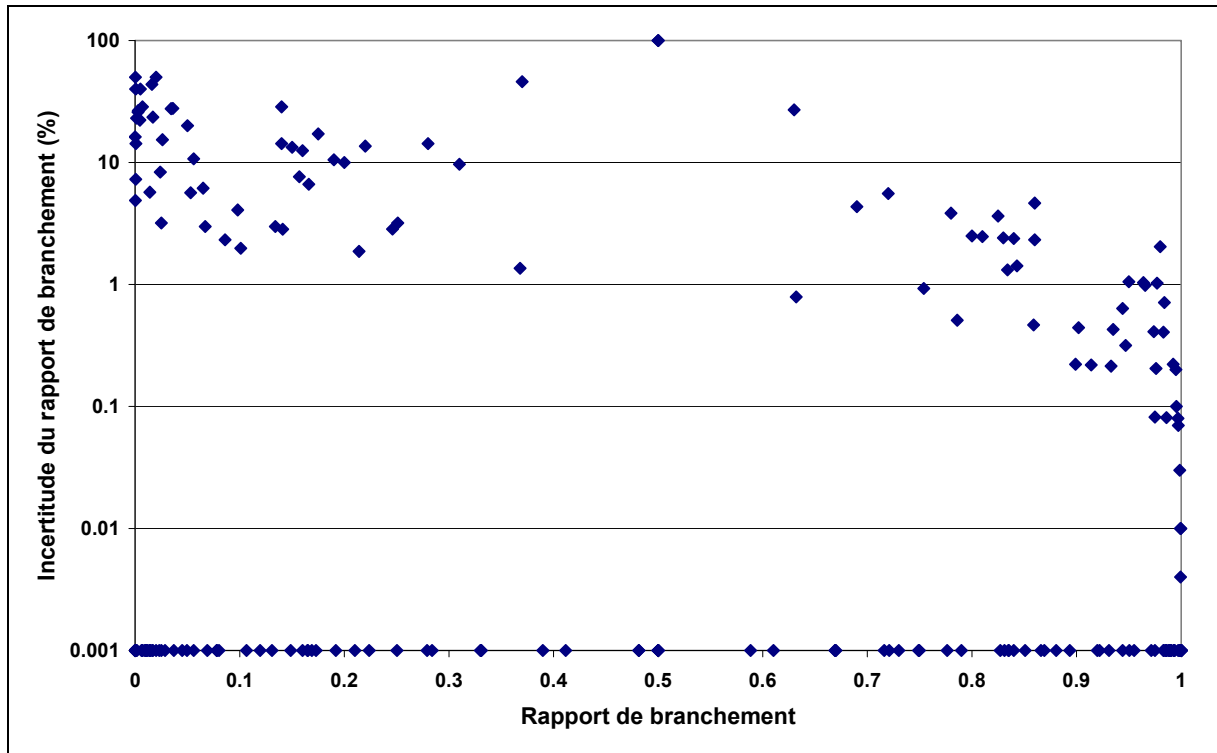


Fig. III.11 : Incertitude des rapports de branchement suivant la valeur du rapport de branchement.

## E – Incertitude sur les sections efficaces

Les valeurs des sections efficaces sont obtenues de la bibliothèque JEFF3.1.1 et du calcul des sections autoprotégées provenant d'ERANOS. Cependant, il n'y a pas d'incertitude disponible pour ces paramètres dans JEFF3.1.1. De même, ERANOS ne propose pas d'incertitude sur les sections calculées.

La bibliothèque EAF [24] possède quelques données d'incertitude, cependant toutes les sections efficaces nécessaires aux calculs des chaînes de réactions présentées n'ont pas de valeur d'incertitude référencée. Les incertitudes qui ont été utilisées dans cette étude sont celles obtenues à Los Alamos et référencées dans la bibliothèque COMMARA-2.0 [25]. Elles proviennent d'évaluations ou de modèles. Il n'y a pas de lien entre les valeurs des sections efficaces provenant de JEFF3.1.1 et les incertitudes des sections provenant de ENDF/B-VII.0. Cependant, étant donné qu'il est nécessaire d'avoir des incertitudes sur les sections efficaces

des noyaux lourds afin de proposer une incertitude sur la concentration de ceux-ci, il semble plus cohérent de prélever les incertitudes de ENDF/B-VII.0 plutôt que de ne rien avoir.

Pendant le déroulement de la thèse, le CEA (DEN/SPRC) a produit l'évaluation des covariances de différentes sections efficaces neutroniques multigroupes, nommé COMAC-CEA pour COvariance MATrices from Cadarache. Les isotopes concernés sont :  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{23}\text{Na}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{59,60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Vn}$ ,  $^{174,177,178,179,180}\text{Hf}$ . Il n'a pas été possible, durant le temps imparti à la thèse, d'intégrer ces nouvelles valeurs dans les études présentées.

Les incertitudes des sections, provenant de ENDF/B-VII.0, sont proposées pour des sections à 33 groupes calculées pour un spectre rapide. Il est nécessaire de condenser ces incertitudes multi-groupes en incertitudes pour des sections mono-énergétiques. Cela est réalisé en utilisant la même méthode que précédemment pour la propagation des incertitudes des sections efficaces 33 groupes provenant de la bibliothèque JEFF3.1.1 :

$$VAR(\sigma) = {}^t S(\sigma / \sigma^{33grp}) VAR(\sigma^{33grp}) S(\sigma / \sigma^{33grp})$$

Avec comme calcul des sensibilités :

$$S(\sigma / \sigma^g) = \frac{\sigma^g \phi^g}{\sigma \phi}$$

ENDF/B-VII.0 ne possédant pas les incertitudes de toutes les sections efficaces de capture neutronique des produits de fission, seules les incertitudes des sections efficaces des noyaux lourds ont été calculées. Les sections de capture neutronique des produits de fission ont été modélisées afin d'observer l'effet de celles-ci sur les sensibilités mais leur incertitude a été portée à 1%.

La méthode de propagation des incertitudes a été présentée. Elle correspond à une propagation déterministe nécessitant le calcul de coefficients de sensibilité. Les ordres supérieurs à l'ordre 1 du développement en série de Taylor ont été négligés supposant une linéarité des résultats par rapport aux variations des paramètres. Cela amène à l'équation caractéristique de la propagation déterministe des incertitudes.

Il a été montré que le calcul des sensibilités de manière directe est suffisamment précis pour être utilisé. De même, il a été montré que le calcul du bilan matière par une exponentielle de matrice est de nos jours suffisamment précis. Ces deux résultats vont permettre de gagner du temps de calcul.

Les données nucléaires utilisées et leurs incertitudes ont été présentées et analysées. L'incertitude des sections efficaces à un groupe a été obtenue de la condensation de l'incertitude des sections efficaces de la bibliothèque COMMARA-2.0. Il a été décidé de considérer tous les paramètres comme étant décorrélés.

Afin d'utiliser le code CYRUS, il faut maintenant valider les hypothèses de linéarité et de normalité qui ont été faites. De plus, il faut valider numériquement le calcul déterministe avec un calcul probabiliste.

## **Chapitre 3 – Validation théorique de la méthode déterministe et comparaison par rapport à la méthode probabiliste sur l'exemple de la courbe de fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$ dans un spectre thermique**

CYRUS est un code déterministe de propagation des incertitudes. Plusieurs hypothèses ont été nécessaires à son développement. Les deux hypothèses fortes sont la linéarité de la variation du résultat par rapport à la variation de ses paramètres et le fait que toutes les lois de distribution des paramètres et des résultats soient gaussiennes.

Ces deux hypothèses peuvent apporter un biais dans nos calculs et peut-être conduire à une sous-estimation des incertitudes. Le risque de la première hypothèse est de sous-estimer la valeur de la variance. Pour la seconde, le risque est une mauvaise interprétation du domaine de confiance.

Nous allons chiffrer l'impact de ces deux hypothèses en résolvant des systèmes simples mais représentatifs de nos études. Pour la première hypothèse, nous allons étudier l'impact des termes du second ordre du développement en série de Taylor sur la loi de propagation des incertitudes. Pour la deuxième hypothèse, nous allons étudier l'évolution de la forme d'une distribution gaussienne à travers les calculs d'évolution et de puissance résiduelle en faisant des calculs probabilistes sous SCILAB.

Enfin, nous comparerons sur un exemple les résultats de CYRUS avec ceux du couplage URANIE/MENDEL [26]. Ceci permettra de comparer la méthode déterministe à la méthode probabiliste. L'exemple sera une fission élémentaire d'un noyau d' $^{235}\text{U}$  par un neutron thermique. Ceci permettra, dans la partie IV paragraphe 3, de comparer les résultats de puissance résiduelle de DARWIN/JEFF3.1.1 avec les mesures existantes.

## I – Justification de l'approximation de linéarité

L'approximation de linéarité est réalisée deux fois dans la méthodologie que nous employons. Tout d'abord, elle a été réalisée dans la partie II chapitre 2 paragraphe II.A.2, lors du calcul de la sensibilité par la méthode directe. Le calcul avait néanmoins été validé en comparant sur un exemple avec une méthode plus précise et aussi avec la théorie.

Elle est réalisée une deuxième fois lors du développement en série de Taylor au premier ordre du résultat par rapport à ses paramètres.

$$X(p_i) = X|_{p^0} + \sum_i \left. \frac{\partial X}{\partial p_i} \right|_{p^0} \delta p_i$$

Avec :

$X$  : le résultat qui dépend des paramètres  $p_i$ ,

$p_i$  :  $i^{\text{ème}}$  paramètre dont dépend  $X$  et possédant une incertitude,

$\delta p_i$  : incertitude du  $i^{\text{ème}}$  paramètre,

$p^0$  : valeur moyenne des paramètres  $p_i$ .

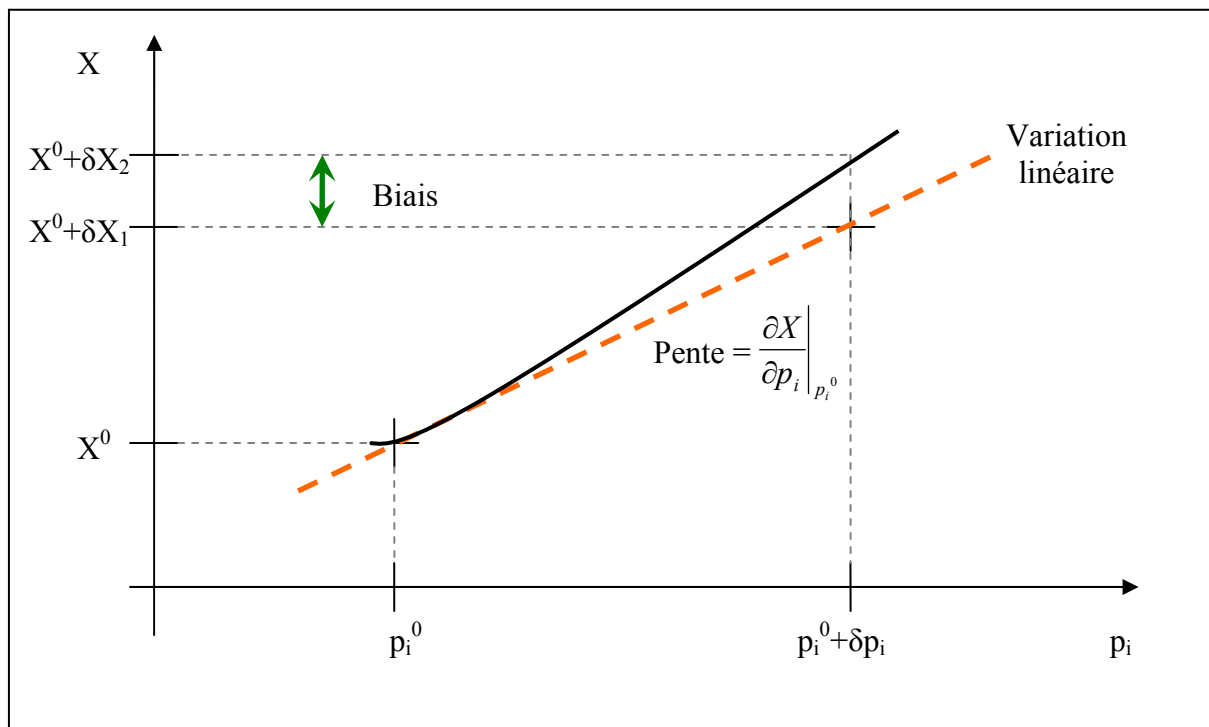


Fig. III.12 : Représentation du coefficient de sensibilité absolue au premier ordre et du possible biais en cas de non-linéarité.



En effet, sous cette hypothèse, le résultat varie linéairement par rapport aux paramètres, avec comme pente la dérivée du résultat par rapport au paramètre évaluée à la valeur des paramètres moyens (voir **figure III.12**).

Pour réduire les possibles biais, il est nécessaire de poursuivre le développement en série de Taylor aux ordres supérieurs. Celui-ci est porté à l'ordre 2 afin de savoir s'il est nécessaire de prendre cet ordre en compte en comparant son impact à celui de l'ordre 1. Si celui-ci se révélait négligeable, alors les ordres supérieurs le seraient aussi.

$$X(p_i) = X|_{p^0} + \sum_i \frac{\partial X}{\partial p_i} \bigg|_{p^0} \delta p_i + \frac{1}{2!} \left[ \sum_i \frac{\partial^2 X}{\partial p_i^2} \bigg|_{p^0} \delta p_i^2 + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{\partial^2 X}{\partial p_i \partial p_j} \bigg|_{p^0} \delta p_i \delta p_j \right] + \dots$$

La formule de propagation des incertitudes, en considérant un développement en série de Taylor jusqu'à l'ordre 2, en supposant les lois de distribution des paramètres gaussiennes et en supposant que les paramètres sont indépendants devient (voir ANNEXE 1 pour le développement) :

$$\begin{aligned} VAR(X) = & S^{(1)}(X/p) VAR(p) S^{(1)}(X/p) \\ & + \frac{1}{2} S^{(2a)}(X/p) VAR^2(p) S^{(2a)}(X/p) + \frac{1}{4} \sum_i \sum_{i \neq j} S_{ij}^{(2b)} \text{var}(p_i) \text{var}(p_j) \end{aligned}$$

Avec :

$$\text{la sensibilité relative du premier ordre } S^{(1)}(X/p_i) = \frac{p_i^0}{X^0} \frac{\partial X}{\partial p_i} \bigg|_{p^0},$$

$$\text{la sensibilité relative du deuxième ordre (terme au carré) } S^{(2a)}(X/p_i) = \frac{p_i^{02}}{X^0} \frac{\partial^2 X}{\partial p_i^2} \bigg|_{p^0},$$

$$\text{la sensibilité relative du deuxième ordre (terme croisé) } S_{ij}^{(2b)}(X/p_i) = \frac{p_i^0 p_j^0}{X^0} \frac{\partial^2 X}{\partial p_i \partial p_j} \bigg|_{p^0}.$$

La loi de propagation des variances est formée du terme de propagation du premier ordre vu auparavant, auquel est ajoutée la propagation du second ordre formée de deux termes. Le

premier terme du second ordre peut être exprimé comme la dérivée seconde du résultat par rapport au paramètre étudié. Le deuxième terme du second ordre est un terme croisé faisant apparaître deux paramètres différents.

Pour vérifier l'hypothèse de linéarité, il est nécessaire de calculer les coefficients de sensibilité du premier et du second ordre, puis de comparer le terme de propagation du premier ordre avec celui du deuxième ordre. Ces calculs et comparaisons vont être réalisés pour les différents cas apparaissant dans notre problématique : c'est-à-dire la propagation des incertitudes sur le bilan matière en irradiation et en refroidissement et sur la puissance résiduelle.

## **A – Calcul de l'importance du terme du second ordre dans la variance du bilan matière pendant l'irradiation**

Les paramètres apparaissant dans les équations d'évolution sont les rendements de fission, les rapports de branchement, les périodes, les sections efficaces, le flux et les concentrations initiales.

### **1) Sensibilité des produits de fission aux paramètres**

Ecrivons les équations de Bateman modélisant l'évolution des produits de fission en supposant que la concentration des noyaux lourds n'évolue pas suffisamment pour la prendre en compte. Supposons que la concentration en noyaux lourds puisse néanmoins avoir une incertitude et que la concentration initiale des produits de fission soit nulle comme dans le cas d'un assemblage neuf.

Le produit de fission A est créé par la fission des noyaux lourds ainsi que le produit de fission B et C. Chacun des trois produits de fission décroît en éjectant un  $\beta^-$ . De plus, le produit de fission A disparaît en capturant un neutron, formant ainsi le produit de fission B. La décroissance du produit de fission A vers le produit de fission C n'est pas totale mais admet un rapport de branchement.

Ainsi les équations suivantes sont obtenues :

$$\begin{cases} \frac{dN_A}{dt} = \sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow A}^i - (\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi) N_A \\ \frac{dN_B}{dt} = \sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow B}^i + \sigma_{A \rightarrow B} \phi N_A - \lambda_B N_B \\ \frac{dN_C}{dt} = \sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow C}^i + br_{A \rightarrow C} \lambda_A N_A - \lambda_C N_C \\ N_A(0) = N_B(0) = N_C(0) = 0 \end{cases}$$

Ces équations ont pour solution :

$$\begin{aligned} N_A(t) &= \frac{\sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow A}^i}{\lambda_A} (1 - e^{-(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t}) \\ N_B(t) &= \frac{\sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi \left( \frac{\sigma_{A \rightarrow B} \phi}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi} Y_{NL \rightarrow A}^i + Y_{NL \rightarrow B}^i \right)}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) \\ &\quad + \frac{\sigma_{A \rightarrow B} \phi}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi} \sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow A}^i \frac{1}{\lambda_B - \lambda_A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \\ N_C(t) &= \frac{\sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi (br_{A \rightarrow C} Y_{NL \rightarrow A}^i + Y_{NL \rightarrow C}^i)}{\lambda_C} (1 - e^{-\lambda_C t}) \\ &\quad + \frac{br_{A \rightarrow C} \sum_{NL} N_{NL} \sigma_{NL} \phi Y_{NL \rightarrow A}^i}{\lambda_C - \lambda_A} (e^{-\lambda_C t} - e^{-\lambda_A t}) \end{aligned}$$

Une première analyse de ces solutions montre que les rendements de fission ainsi que les rapports de branchement interviennent linéairement. De même, la concentration des noyaux lourds intervient elle aussi linéairement, et en conséquence, leur concentration initiale.

Les deux paramètres qui sont clairement non-linéaires sont la période et la section efficace de capture neutronique du produit de fission A.

Dans la suite est analysé l'impact de la constante de décroissance et du taux de fission microscopique sur la concentration de A et de B, ainsi que de la constante de décroissance de A sur C.

L'étude de la constante de décroissance revient au même que d'étudier la période. Seul le signe change, la valeur absolue reste la même. L'étude du taux de capture microscopique permet lui aussi de simplifier la notation. La dernière simplification sera de supposer que  $br_{A \rightarrow C} = 1$ .

#### a) Etude du produit de fission A

Commençons par étudier le produit de fission A. Les sensibilités au premier ordre de cet isotope à sa période et à son taux de capture microscopique sont les suivantes :

$$S(N_A / \lambda_A) = \lambda_A \frac{1}{N_A} \frac{dN_A}{d\lambda_A}$$

$$S(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi) = \sigma_{A \rightarrow B} \phi \frac{1}{N_A} \frac{dN_A}{d(\sigma_{A \rightarrow B} \phi)}$$

On remarque que dériver par rapport à la constante de décroissance ou par rapport au taux de capture microscopique revient au même.

$$\frac{1}{N_A} \frac{dN_A}{d(\sigma_{A \rightarrow B} \phi)} = \frac{1}{N_A} \frac{dN_A}{d(\lambda_A)} = \frac{t}{e^{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t} - 1} - \frac{1}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi}$$

Cette fonction est monotone et tend vers les limites suivantes, ce qui implique que les deux coefficients de sensibilité relative ci-dessus sont inférieurs ou égaux à l'unité.

$$\frac{t}{e^{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t} - 1} - \frac{1}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi} \xrightarrow[t \rightarrow 0]{} 0 \quad \& \quad \xrightarrow[t \rightarrow \infty]{} -\frac{1}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi}$$

Il sera démontré plus loin que pour prétendre que le temps d'irradiation tende vers l'infini dans le cas des sensibilités, il faut que celui-ci soit supérieur à 10 fois la période de A.

Les dérivées secondes sont calculées de la même façon :

$$S^{(2)}(N_A / \lambda_A) = \lambda_A^2 \frac{1}{N_A} \frac{d^2 N_A}{d\lambda_A^2}$$

$$S^{(2)}(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi) = (\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2 \frac{1}{N_A} \frac{d^2 N_A}{d(\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2}$$

Et de la même manière, on remarque que dériver par rapport à la constante de décroissance ou par le taux de capture microscopique revient au même.

$$\frac{1}{N_A} \frac{d^2 N_A}{d(\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2} = \frac{1}{N_A} \frac{d^2 N_A}{d(\lambda_A)^2}$$

$$= -\frac{t^2}{e^{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t} - 1} - \frac{2t}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)} \frac{1}{e^{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t} - 1} + \frac{2}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2}$$

Cette fonction est elle aussi monotone et tend vers les limites suivantes,

$$-\frac{t^2}{e^{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t} - 1} - \frac{2t}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)} \frac{1}{e^{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)t} - 1} + \frac{2}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2}$$

$$\xrightarrow[t \rightarrow 0]{} 0 \quad \& \quad \xrightarrow[t \rightarrow \infty]{} \frac{2}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2}$$

De plus, on remarque que la forme des courbes des sensibilités du premier ordre et du second induit une maximisation de l'impact du second ordre à la saturation. (voir **figure III.13**)

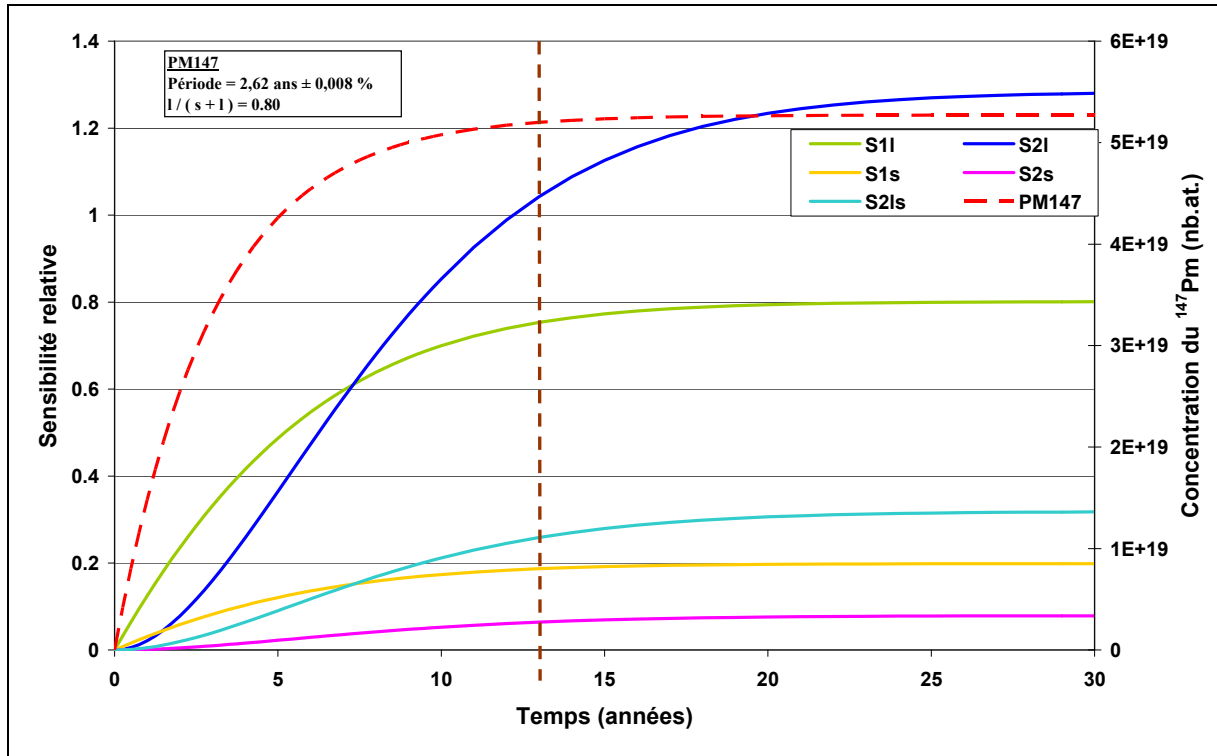


Fig. III.13 : Evolution des sensibilités suivant le pourcentage de saturation de l'isotope (S1l : sensibilité d'ordre 1 de la concentration par rapport à la période, S2l : sensibilité d'ordre 2 de la concentration par rapport à la période, S1s : sensibilité d'ordre 1 de la concentration par rapport à la section efficace de capture, S2s : sensibilité d'ordre 2 de la concentration par rapport à la section efficace de capture, S2ls : terme croisé de la sensibilité d'ordre 2 de la concentration par rapport à la période et à la section efficace de capture).

De plus, il est évident sur la **figure III.13** ci-dessus que, si la concentration est saturée après 5 fois sa période de décroissance, les sensibilités sont saturées après environ 10 fois la période de décroissance.

A la saturation, les coefficients de sensibilité relative du premier et du second ordre sont liés :

$$S(N_A / \lambda_A) = \frac{\lambda_A}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi}$$

$$S(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi) = \frac{\sigma_{A \rightarrow B} \phi}{\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi}$$

$$S^{(2a)}(N_A / \lambda_A) = \frac{2\lambda_A^2}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2} = 2 S(N_A / \lambda_A)^2$$

$$S^{(2a)}(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi) = \frac{2(\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2} = 2 S(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2$$

$$S^{(2b)}(N_A / \lambda_A, \sigma_{A \rightarrow B} \phi) = \frac{2\lambda_A \sigma_{A \rightarrow B} \phi}{(\lambda_A + \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2} = 2 S(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi) S(N_A / \lambda_A)$$

Toujours afin de maximiser le terme du second ordre, on remarque d'après la **figure III.14** que l'impact du second ordre est le plus fort quand l'un des termes, constante de décroissance ou taux de capture microscopique, peut être négligé.

Dans cette figure, les sensibilités sont élevées au carré et le coefficient 1/2, apparaissant dans le terme du second ordre de la formule de propagation (formule du départ), a été pris en compte dans les sensibilités du second ordre afin qu'il n'y ait plus qu'à ajouter la variance des paramètres.

$$\begin{aligned} VAR(N_A) &= S(N_A / \lambda_A)^2 \delta \lambda_A^2 + S(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2 \delta (\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2 \\ &+ \frac{1}{2} \left[ 4S(N_A / \lambda_A)^4 \delta \lambda_A^4 + 4S(N_A / \sigma_{A \rightarrow B} \phi)^4 \delta (\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^4 + 4S(N_A / \lambda_A, \sigma_{A \rightarrow B} \phi) \delta (\sigma_{A \rightarrow B} \phi)^2 \delta \lambda_A^2 \right] \end{aligned}$$

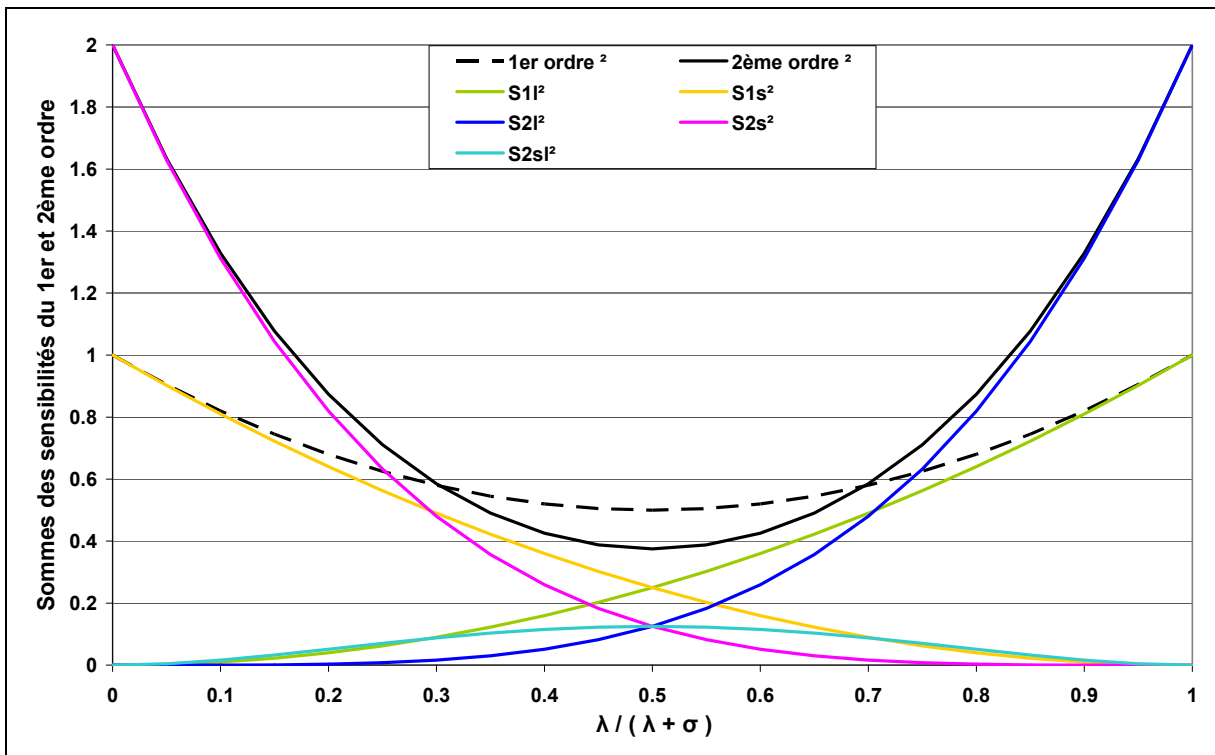


Fig. III.14 : Courbes des sensibilités relatives du premier et du second ordre élevées au carré suivant la compétition entre la constante de décroissance et le taux de capture microscopique.

Ainsi, en supposant que la constante de décroissance soit négligeable, on déduit de la **figure III.15** ci-dessous que le second ordre ne représente que 10 % de l'incertitude de la concentration de A à partir d'une incertitude du taux de capture de 35%. Ce résultat est transposable à la constante de décroissance.

L'incertitude moyenne des constantes de décroissance étant de 3 %, le second ordre ajouterait au maximum 0.0027 % d'incertitude sur la concentration de A aux 3 % d'incertitude qu'apporte le premier ordre.

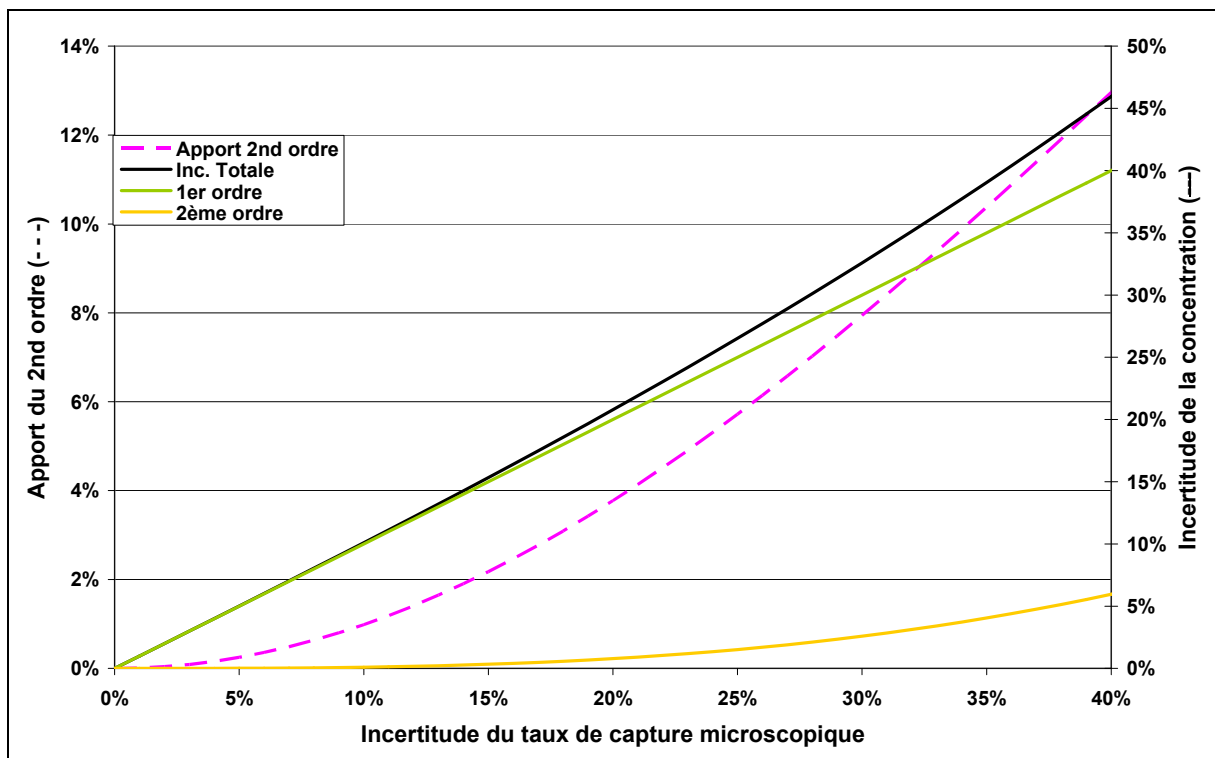


Fig. III.15 : Impact du second ordre sur l'incertitude de la concentration de A.

La conclusion de cette étude est que l'hypothèse de linéarité est tout à fait valable pour le calcul des incertitudes des produits de fission par rapport à leur section de capture et période.

#### b) Etude des produits de fission B et C

Nous avons remarqué que le terme du second ordre s'exprimait plus fortement si nous ne prenions en compte que la période ou que le taux de capture microscopique. Si l'on minimise l'un par rapport à l'autre, nous nous apercevons qu'étudier l'hypothèse de linéarité pour la période ou pour la section efficace revient au même.



Nous allons donc analyser l'impact de la constante de décroissance du produit de fission A sur le produit de fission C. Comme nous l'avons vu pour le produit de fission A, nous devons prendre en compte les sensibilités du second ordre par rapport à la constante de décroissance des produits de fission A et C, mais aussi la sensibilité croisée du second ordre.

La forme analytique des sensibilités est très similaire à celles décrites pour le produit de fission A. Plutôt que de les réécrire, analysons les résultats sur un exemple. Cet exemple est la formation du  $^{89}\text{Kr}$  et du  $^{89}\text{Rb}$  par fission des noyaux lourds et décroissance du  $^{89}\text{Kr}$  vers le  $^{89}\text{Rb}$ . Les périodes respectives sont de 189 secondes et 924 secondes. Leurs incertitudes sont de 1,26 % et 1,30 % mais nous prendrons 10 % d'incertitude (queue de distribution des incertitudes des périodes des noyaux, voir figure III.9) afin de maximiser l'impact du second ordre. Le  $^{89}\text{Rb}$  est formé à 90 % par le  $^{89}\text{Kr}$  et les 10 % restant par la fission directe des noyaux lourds sur le  $^{89}\text{Rb}$ . Ainsi, la fission ne fait pas obstacle à l'étude de la période.

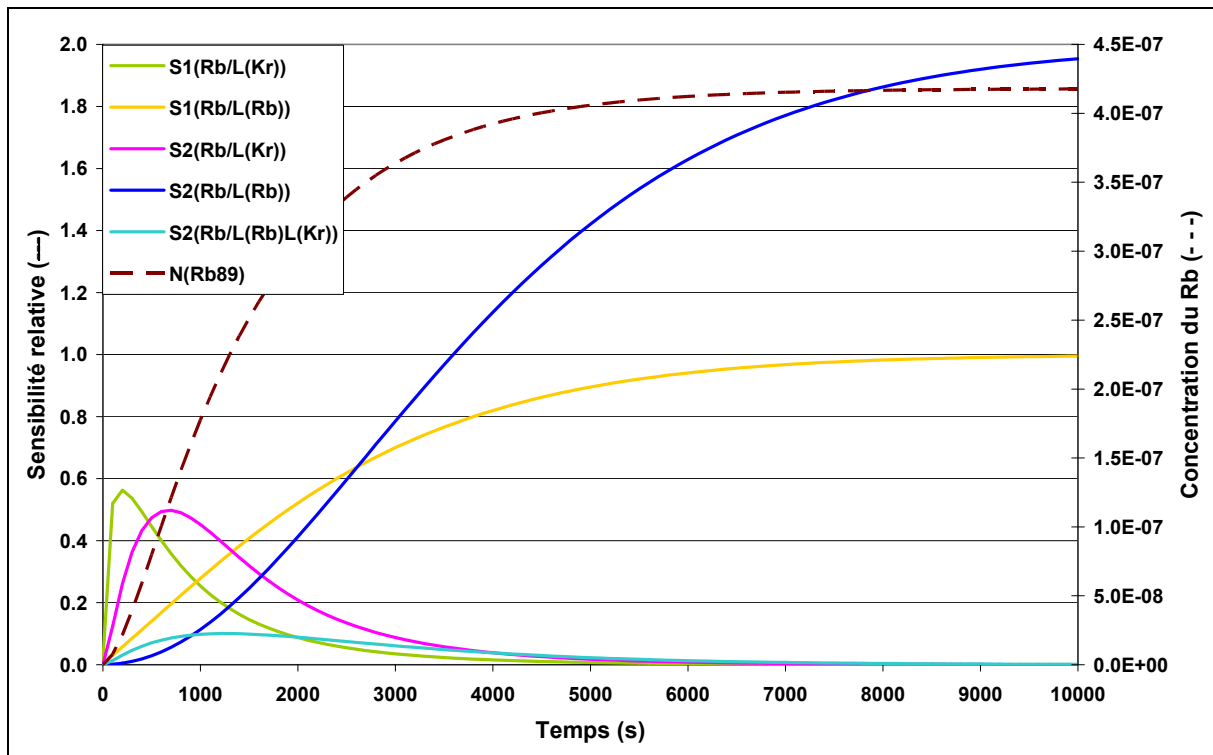


Fig. III.16 : Sensibilité relative du  $^{89}\text{Rb}$  aux périodes du  $^{89}\text{Kr}$  et du  $^{89}\text{Rb}$ .

La **figure III.16** montre que le  $^{89}\text{Rb}$  est sensible à la période du  $^{89}\text{Kr}$  tant que ces deux noyaux ne sont pas saturés. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2 de cette partie, la période du père n'impacte que sur la vitesse de saturation du fils.

La **figure III.16** montre aussi que les sensibilités du second ordre ne sont pas négligeables par rapport à celles du premier ordre, mais peuvent même être supérieures à celles-ci. Cependant, dans la formule de propagation des incertitudes, la variance du paramètre apparaît au carré dans le terme du second ordre alors qu'elle n'apparaît qu'à la puissance 1 dans le terme du premier ordre. Ainsi, même avec une incertitude largement supérieure à la moyenne, la **figure III.17** montre que le terme du second ordre n'a aucun impact sur l'incertitude finale (l'incertitude totale et l'incertitude due au premier ordre sont quasiment équivalentes).

Dans la **figure III.17**, le pic de l'incertitude totale (Inc. Nc) à 200 secondes est dû à l'incertitude de la période du  $^{89}\text{Kr}$  et la montée vers la saturation est due à l'incertitude de la période du  $^{89}\text{Rb}$ . La prise en compte du second ordre ajoute au maximum, 0,1 % d'incertitude sur la concentration, ce qui représente 1 % de l'incertitude totale de la concentration.

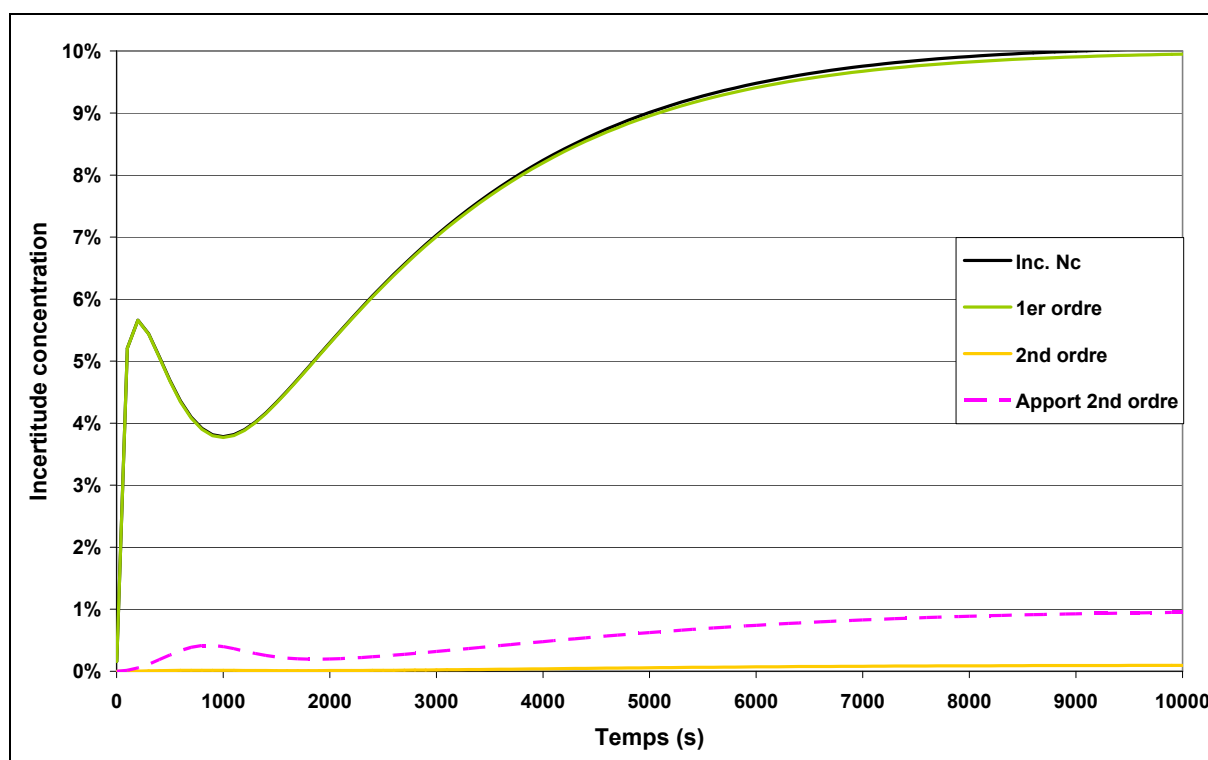


Fig. III.17 : Incertitude de la concentration du  $^{89}\text{Rb}$  suivant le temps d'irradiation.

L'exemple présenté ci-dessus représente la quasi-totalité des cas. Dans les autres cas, ce sont les noyaux fils qui sont plus stables que leurs noyaux pères. Toutefois, cela impacte peu la forme de la **figure III.16**. Les sensibilités des premier et second ordres de la concentration du noyau fils à sa période sont saturées avant celles de la concentration du noyau fils à la période du noyau père. Si les périodes sont fortement différentes, la sensibilité croisée du second

ordre devient égale à la sensibilité du premier ordre de la concentration du noyau fils à la période du noyau père.

L'impact de la propagation du second ordre de l'incertitude de la période du noyau père n'a donc pas d'impact sur l'incertitude de la concentration du noyau fils durant l'irradiation. La conclusion est identique en ce qui concerne la section efficace de capture des produits de fission.

De cette partie, il peut être conclu que l'impact du second ordre sur l'incertitude des concentrations en irradiation est négligeable. L'hypothèse de linéarité est donc validée.

## **B – Calcul de l'importance du terme du second ordre dans la variance du bilan matière pendant le refroidissement**

A la différence de l'irradiation, un noyau ne peut être saturé pendant le refroidissement. Il est possible de considérer que ce noyau a quasiment disparu après cinq fois sa période ou après cinq fois la période de son père si c'est celui-ci qui dicte l'activité du fils. Cependant, un noyau peut avoir fortement décru et continuer à impacter la puissance résiduelle en raison, par exemple, d'une énergie de décroissance très élevée.

Ainsi, avant de commencer l'étude des sensibilités en refroidissement, il est nécessaire d'étudier la gamme de temps pendant laquelle un noyau a un impact sur la puissance résiduelle.

### **1) Etude des temps caractéristiques d'impact des noyaux sur la puissance résiduelle**

Prenons l'exemple d'un assemblage de type cœur interne de PHENIX irradié pendant 1 an sous un spectre et un flux rapide. Le but est de relier l'intervalle temporel de l'impact d'un noyau sur la puissance résiduelle à sa concentration.

Tout d'abord, il peut être montré que pour tous les temps de décroissance, la sélection des noyaux contribuant à plus de 0,1 % de la variance de la puissance résiduelle représente plus

de 97 % de cette variance. Cela permet de limiter l'étude à 169 noyaux et d'expliquer finement l'incertitude de la puissance résiduelle.

Ensuite, pour chaque noyau, les bornes temporelles minimum et maximum pour lesquelles ils contribuent à plus de 0,1 % de la variance de la puissance résiduelle ont été calculées. Ces bornes ont été divisées par la période du noyau ou par la période de son père si l'activité du noyau étudié est dictée par celui-ci. Cela permet d'obtenir le temps caractéristique pendant lequel un noyau impacte l'incertitude de la puissance résiduelle de manière non-négligeable.

La **figure III.18** présente la répartition des bornes temporelles maximales des 169 noyaux sélectionnés. Pour être conservatif, il en est déduit qu'un noyau n'a d'impact sur l'incertitude de la puissance résiduelle que jusqu'à un temps de décroissance égal à 5 fois sa période.

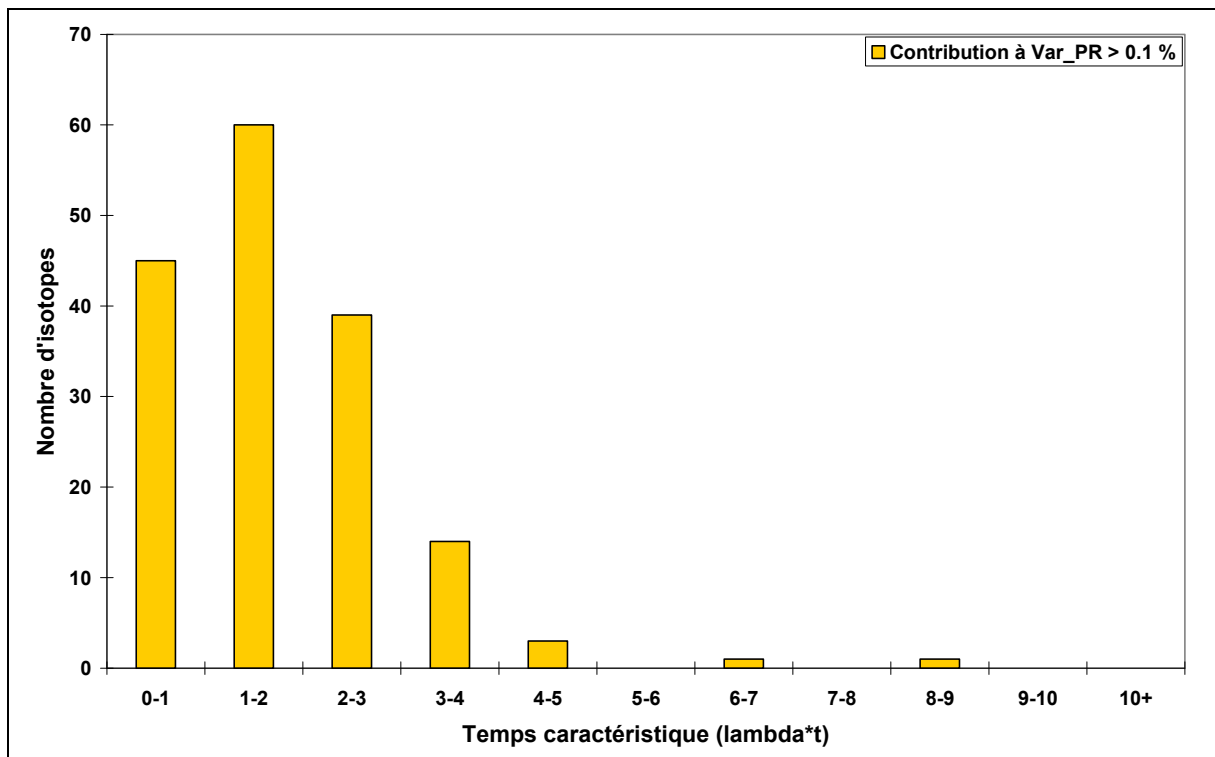


Fig. III.18 : Caractérisation du temps d'impact des noyaux sur l'incertitude de la puissance résiduelle pendant la décroissance.

D'après la loi de décroissance exponentielle, 5 fois la période du noyau correspond à une disparition de 99 % de la concentration du noyau. Il est donc considéré qu'un noyau ne contribue plus à l'incertitude de la puissance résiduelle après 5 fois sa période.

En même temps, il est possible de caractériser de la même manière le temps maximum d'impact d'un noyau sur la puissance résiduelle. Il suffit cette fois ci de trouver les bornes pour lesquelles la sensibilité de la puissance résiduelle au noyau est supérieure à 0,1 %. Le choix de 0,1 % est un peu limite pour les premières secondes de la décroissance, mais suffisant pour les temps suivants comme montré dans le chapitre 2.

Pour être conservatif, la **figure III.19** ci-dessous montre qu'un noyau a un impact sur la puissance résiduelle jusqu'à un temps de décroissance égal à 10 fois sa période.

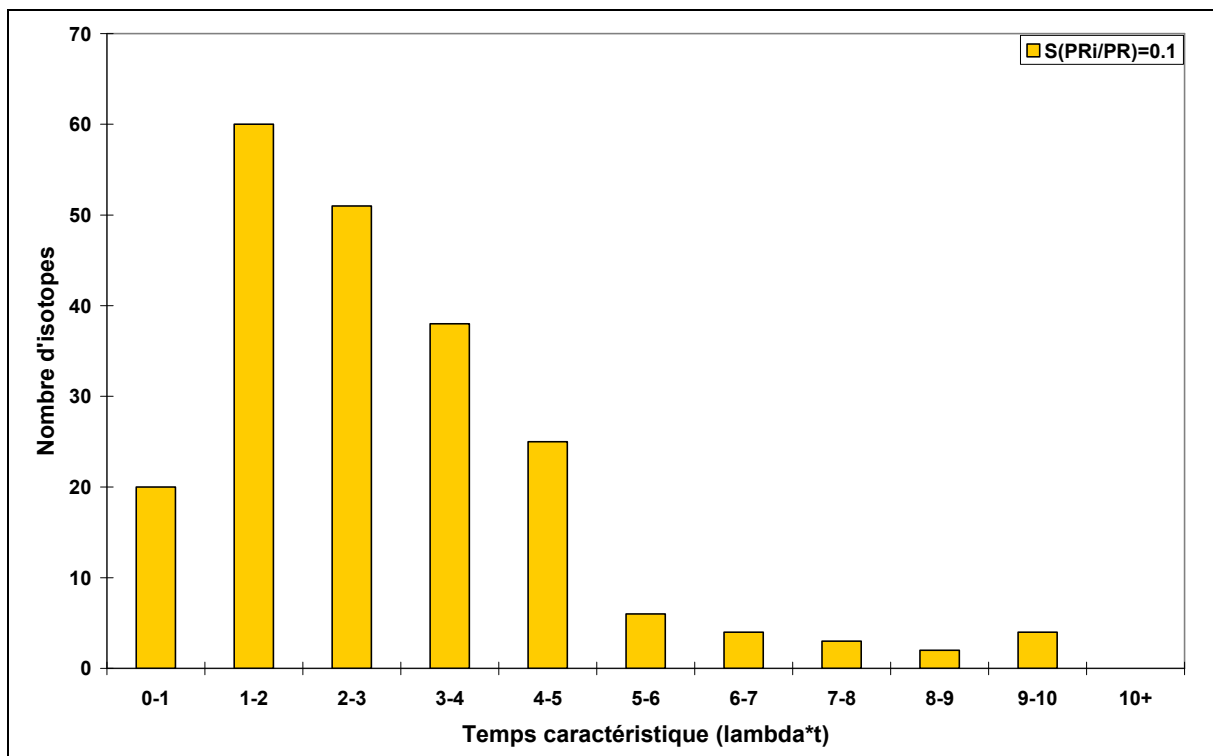


Fig. III.19 : Caractérisation du temps d'impact des noyaux sur la puissance résiduelle pendant la décroissance.

## 2) Etude de l'impact de la sensibilité du deuxième ordre de la concentration d'un isotope à sa période

Deux paramètres ont un impact sur l'incertitude du bilan matière durant le refroidissement : la concentration initiale – qui correspond à la concentration en fin d'irradiation – et la période. Prenons un exemple de décroissance d'un produit de fission A sur un produit de fission B.

$$\begin{cases} \frac{dN_A}{dt} = -\lambda_A N_A \\ \frac{dN_B}{dt} = \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \\ N_A(0) = N_A^0 \quad ; \quad N_B(0) = N_B^0 \end{cases}$$

Les solutions sont les suivantes :

$$\begin{aligned} N_A(t) &= N_A^0 e^{-\lambda_A t} \\ N_B(t) &= N_B^0 e^{-\lambda_B t} + \frac{\lambda_A N_A^0}{\lambda_B - \lambda_A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \end{aligned}$$

Comme signalé au début du chapitre 3 paragraphe I, les concentrations initiales apparaissent de façon linéaire, il n'est donc pas nécessaire de vérifier la validité de l'hypothèse pour ce paramètre. Par contre, l'étude doit être reprise pour la période. Afin de maximiser l'apport du terme du second ordre, seule la période est prise en considération

#### a) Etude du produit de fission A

Les sensibilités du produit de fission A aux paramètres sont les suivantes :

$$\begin{aligned} S^{(1)}(N_A / N_A^0) &= 1 \\ S^{(1)}(N_A / \lambda_A) &= -\lambda_A t \\ S^{(2)}(N_A / \lambda_A) &= 2 S^{(1)}(N_A / \lambda_A)^2 \end{aligned}$$

Même si l'incertitude de la concentration initiale avait été prise en compte, il n'aurait pu y avoir de terme du second ordre croisé entre la période et la concentration initiale puisque la concentration initiale intervient linéairement dans l'expression de la concentration.

Il a été montré, d'après la **figure III.18**, que le temps maximum d'impact d'un noyau sur l'incertitude de la puissance résiduelle est de 5 fois la période. Or, c'est le temps pour lequel l'écart entre les sensibilités du premier et du second ordre est le plus grand.

La **figure III.20** illustre l'impact de la prise en compte du terme du second ordre suivant l'incertitude de la période pour un temps de décroissance égal à 5 fois la période de l'isotope. Il faut remarquer que, même avec une forte incertitude de la période, le terme du second ordre apporte relativement peu d'incertitude au bilan matière. Par contre, l'incertitude du bilan matière peut être très élevée à cause de la forte sensibilité de la concentration à sa période.

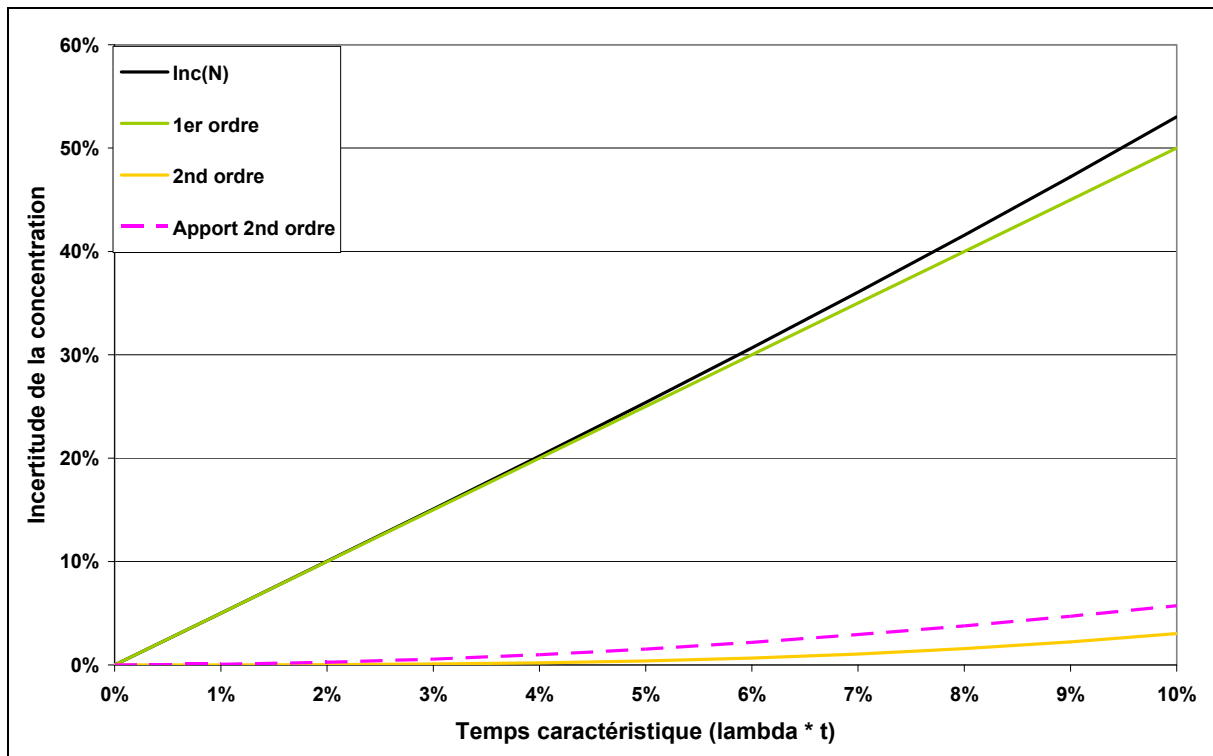


Fig. III.20 : Apport du second ordre dans la décroissance d'un isotope.

#### b) Etude du produit de fission B

Deux cas se présentent pour le produit de fission B. Soit il est plus stable que son père, soit il est plus instable. Dans le premier cas, il dicte lui-même son activité. Dans le second cas, c'est son père qui dicte son activité.

Prenons deux exemples afin d'illustrer ces cas. Le premier cas est représenté par le  $^{89}\text{Rb}$  qui provient de la décroissance du  $^{89}\text{Kr}$ . Le deuxième cas est représenté par le  $^{140}\text{La}$  qui provient de la décroissance du  $^{140}\text{Ba}$ .

D'après l'étude sur la gamme de temps pendant laquelle un noyau impacte sur l'incertitude de la puissance résiduelle, la présente étude aura pour borne supérieure du temps de

### PARTIE III

décroissance : pour l'étude de la concentration du  $^{89}\text{Rb}$  un temps égal à 5 fois sa période, et pour l'étude de la concentration du  $^{140}\text{La}$  un temps égal à 5 fois la période de son noyau père (le  $^{140}\text{Ba}$ ).

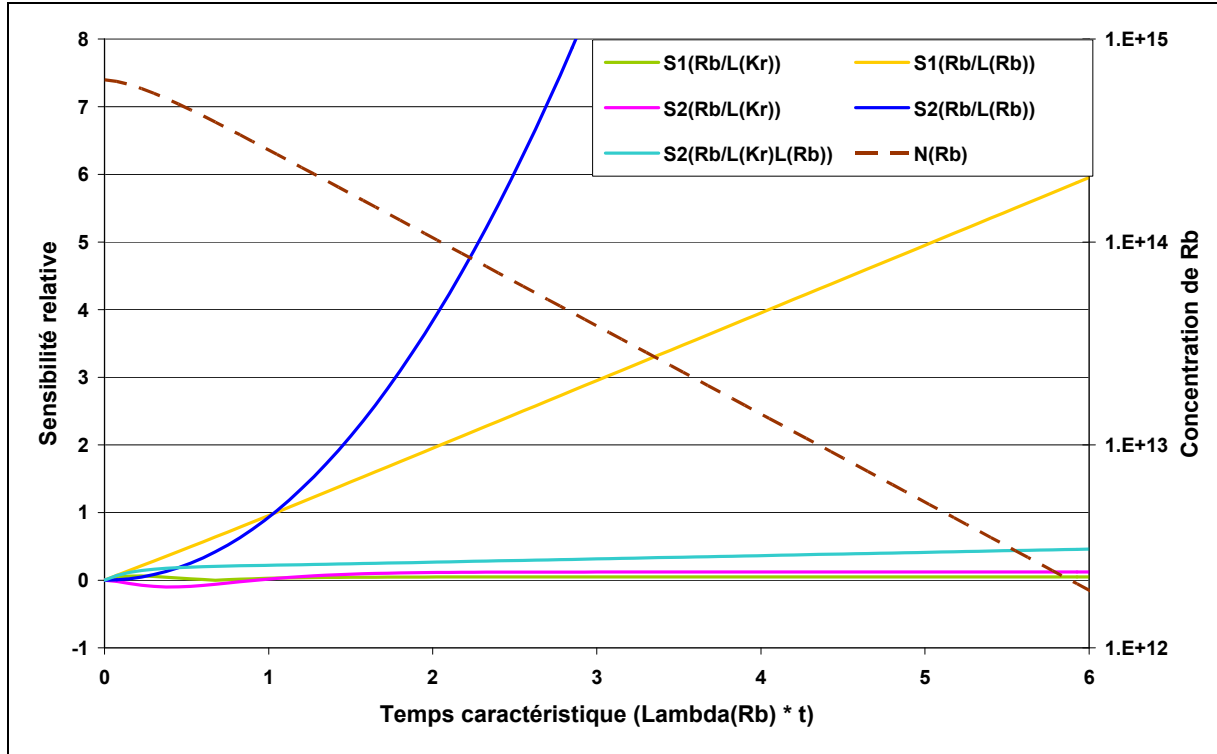


Fig. III.21 : Evolution des sensibilités du  $^{89}\text{Rb}$  aux paramètres.

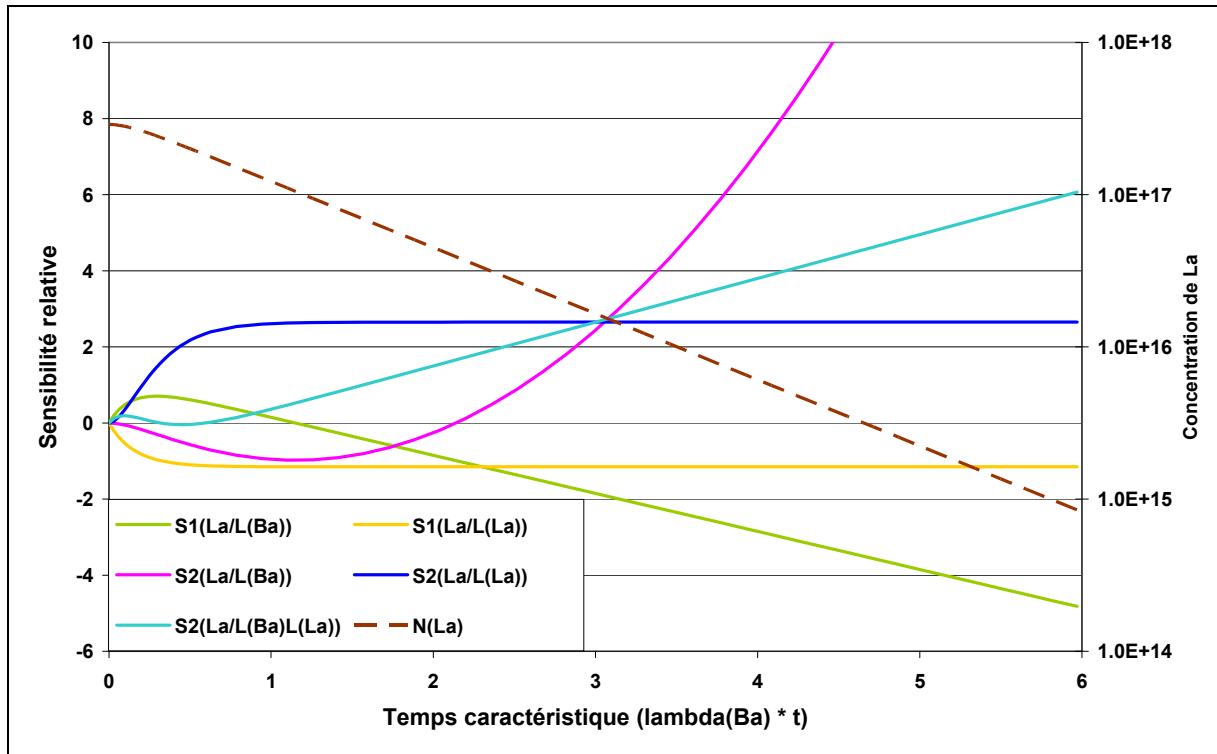


Fig. III.22 : Evolution des sensibilités du  $^{140}\text{La}$  aux paramètres.



La **figure III.21** présente les sensibilités dans le cas du  $^{89}\text{Rb}$  et la **figure III.22** dans le cas du  $^{140}\text{La}$ .

L'activité du  $^{89}\text{Rb}$  ne dépendant quasiment que de lui-même, ce cas-ci est équivalent au cas A. En effet, on retrouve, sur la **figure III.21**, une droite pour la sensibilité d'ordre 1 de la concentration du  $^{89}\text{Rb}$  à sa période, et une sensibilité d'ordre 2 égale au carré de la sensibilité d'ordre 1.

En ce qui concerne le  $^{140}\text{La}$ , d'après la **figure III.22**, les sensibilités de sa concentration à sa période atteignent une saturation comme dans un cas d'irradiation. L'équivalence est justifiée puisqu'un équilibre est instauré entre un terme d'apport et un terme de perte. Pendant l'irradiation l'apport est la fission, pendant la décroissance c'est la décroissance du  $^{140}\text{Ba}$ . Le terme de perte est le même, la décroissance du  $^{140}\text{La}$ .

L'activité du  $^{140}\text{La}$  étant dictée par l'activité du  $^{140}\text{Ba}$ , une fois la quantité initiale de  $^{140}\text{La}$  disparue, les sensibilités du  $^{140}\text{La}$  à la période du  $^{140}\text{Ba}$  sont équivalentes au premier cas.

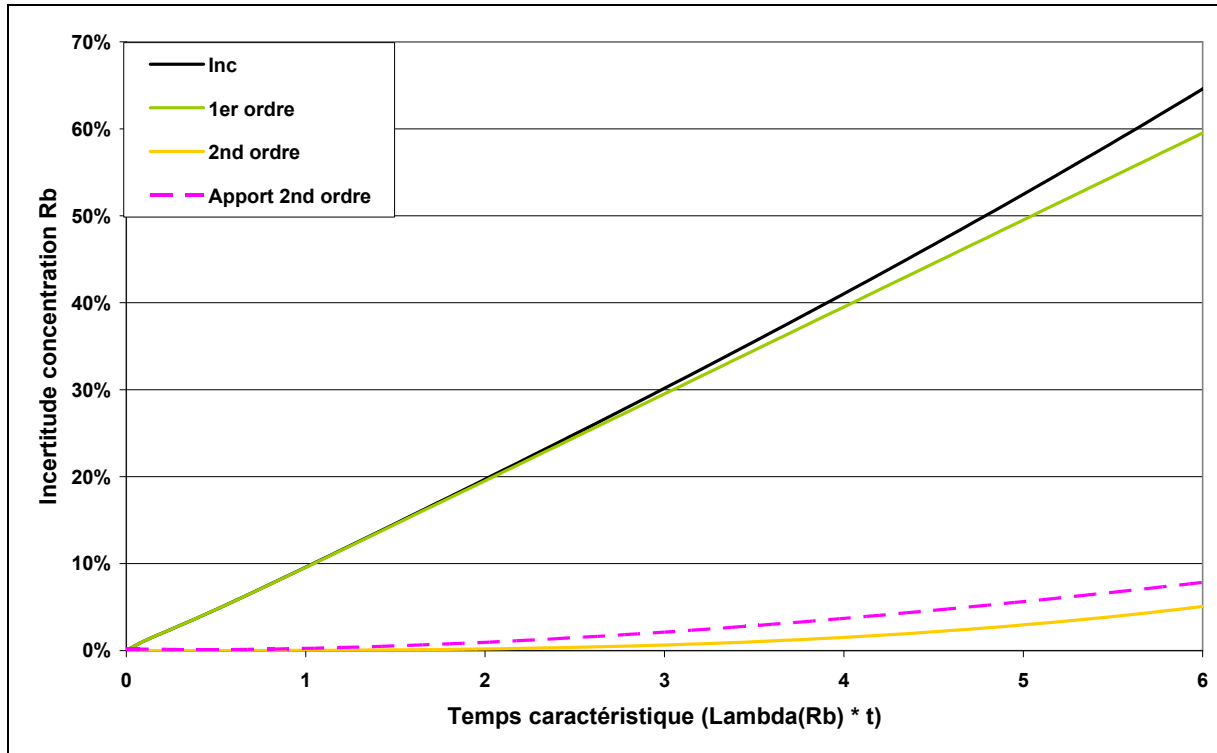


Fig. III.23 : Incertitude de la concentration du  $^{89}\text{Rb}$ .

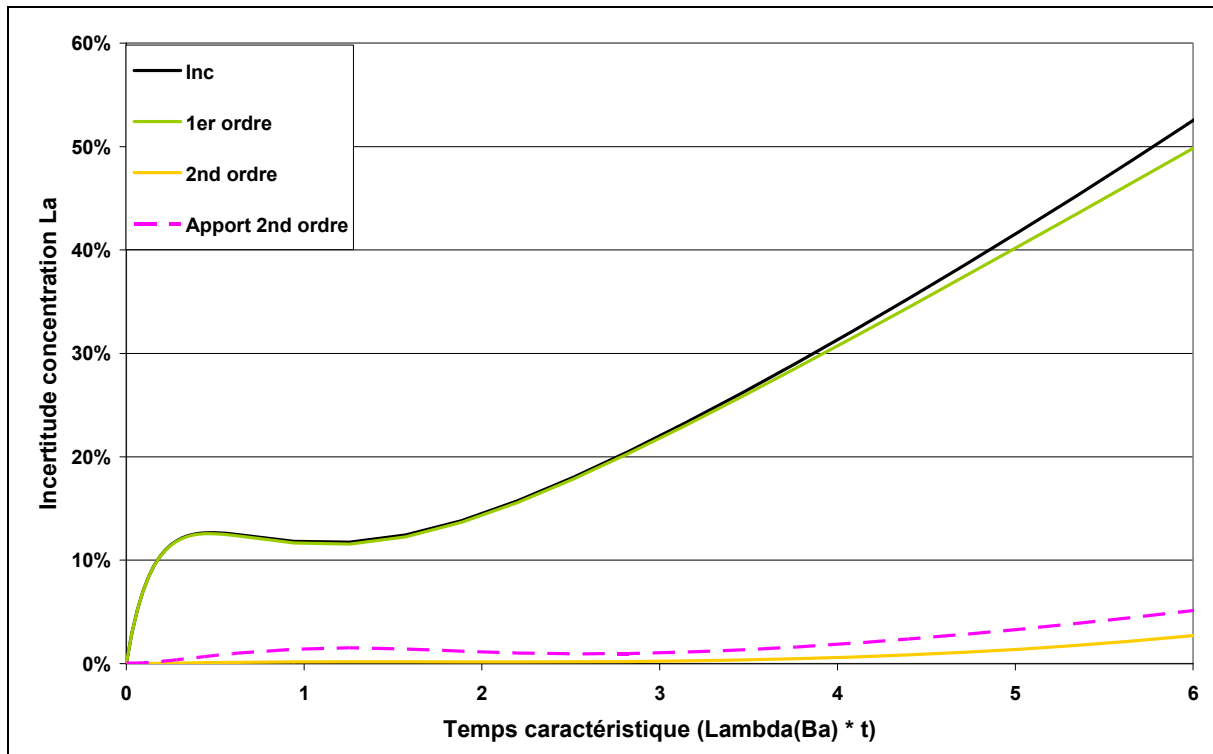


Fig. III.24 : Incertitude de la concentration du  $^{140}\text{La}$ .

La **figure III.23** et la **figure III.24**, représentant l'évolution de l'incertitude de la concentration du  $^{89}\text{Rb}$  et du  $^{140}\text{La}$ , sont obtenues en supposant une incertitude de 10 % sur les constantes de décroissance. Leur analyse montre que le terme du second ordre intervient toujours de façon suffisamment faible pour être négligé. En effet, l'impact n'est que de 5 % et 3 % de l'incertitude du bilan matière total pour un temps de décroissance égal à 5 fois la période. En sachant que l'incertitude des périodes est souvent beaucoup plus faible (2,4 % en moyenne), il peut être conclu que le deuxième ordre est négligeable dans le cas de la décroissance.

### C – Calcul de l'importance du terme du second ordre dans la puissance résiduelle

Autant la question se posait pour les parties précédentes, autant ici le problème est réglé de suite. La puissance résiduelle s'écrit comme la somme des puissances délivrées par chacun des noyaux présents. De plus, ces puissances sont la multiplication des concentrations, des énergies et des constantes de décroissance. Tout étant linéaire, l'hypothèse est valide.

De ce paragraphe I, il peut être conclu que l'hypothèse de linéarité est valide pour tous les paramètres intervenant dans les équations de Bateman. Les paramètres qui auraient pu remettre en cause cette hypothèse ont des incertitudes ou des sensibilités trop faibles.

## II – Justification de l'hypothèse de normalité des concentrations et de la puissance résiduelle

Le calcul déterministe permet de calculer la variance du résultat à partir de la variance des paramètres. Cependant le calcul de cette variance n'est qu'une étape intermédiaire. Le but d'un calcul d'incertitude est de déterminer un domaine de confiance, c'est-à-dire de donner les bornes pour lesquelles la probabilité que le résultat soit encadré par ces bornes est égale à x %.

Par exemple, pour un résultat ayant une dispersion suivant une loi de distribution gaussienne (voir **figure III.25**), le domaine de confiance à 68,2 % est compris entre +1 fois et -1 fois l'écart-type autour de la valeur moyenne. Il est de 95,6 % pour un écart de plus ou moins 2 fois l'écart-type autour de la moyenne et de 99,8 % pour un écart de plus ou moins 3 fois l'écart-type autour de la moyenne.

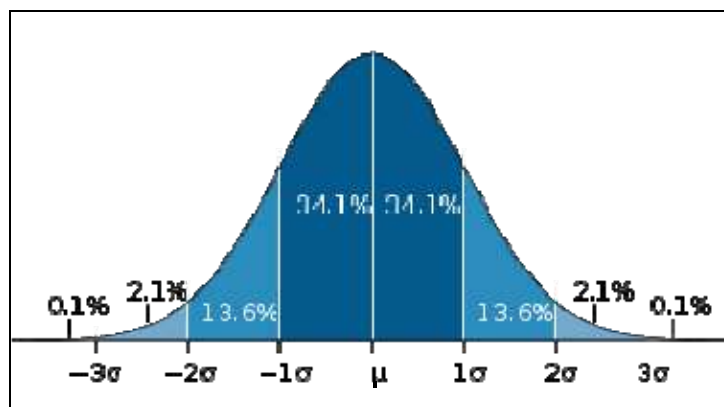


Fig. III.25 : Exemple de définition du domaine de confiance suivant la probabilité que le résultat se trouve à l'intérieur des bornes du domaine.

Ainsi il est possible de relier la variance calculée à un domaine de confiance. Il est cependant nécessaire de connaître la loi de distribution à associer aux paramètres et au résultat afin de

savoir comment relier l'écart-type au domaine de confiance. Suivant la loi de distribution, le domaine de confiance pour une même probabilité peut être plus ou moins étendu. Qui plus est, si la loi de dispersion n'est pas symétrique, alors le domaine de confiance ne l'est plus non plus.

La problématique devient donc : comment définir une loi de distribution aux paramètres d'entrée et aux résultats et la justifier.

### **A – Justification de la loi de distribution normale pour les paramètres d'entrée**

Les paramètres d'entrée du calcul de propagation de l'incertitude sont les données nucléaires (rendements de fission indépendants et cumulés, périodes, énergies de décroissance, rapports de branchement et sections efficaces) et les concentrations isotopiques initiales.

Les incertitudes sur les concentrations isotopiques initiales proviennent de l'usine de production des pastilles de combustible. L'incertitude du procédé de fabrication a été estimée par la centrale et des lots de pastilles sont contrôlés en sortie afin de s'assurer de la bonne isotopie de celles-ci. Les écarts obtenus sur les isotopies des pastilles sont des écarts statistiques, tout biais étant supprimé par un recalage du procédé. Une distribution gaussienne peut donc être envisagée pour ce paramètre.

Les périodes sont obtenues par une mesure de l'activité à différents temps de décroissance. Plus exactement, la valeur de la constante de décroissance est obtenue par l'ajustement d'une fonction affine sur le graphique de l'activité en fonction du logarithme du temps. La fonction étant affine, cet ajustement permet d'obtenir un écart-type sur les paramètres reliés à une distribution gaussienne. La distribution des périodes est donc bien une gaussienne.

Les énergies de décroissance sont obtenues par les mesures de spectres en énergie des rayonnements bêta et gamma. Les incertitudes proviennent de la statistique de mesure des différents pics du spectre. Les énergies bêta et gamma sont les sommes des contributions de chaque pic du spectre dont l'incertitude est statistique. Ces énergies, ainsi que l'énergie totale peuvent être modélisées par des lois de distributions gaussiennes.

Seulement quelques rendements de fission indépendants (les plus grands) sont mesurés. Un protocole de mesure [27] consiste à placer une cible extrêmement pure ( $> 99\%$ ) du noyau à fissionner proche du cœur d'un réacteur expérimental. Les neutrons sont absorbés par le noyau lourd qui peut fissionner et émettre des produits de fission qui s'échappent de la cible avec, outre leur nombre de masse et leur charge, une charge ionique ( $q$ , distribuée entre 15 et 30) et une énergie cinétique ( $E_k$ , distribuée entre 50 et 120 MeV). Ces produits de fission sont ensuite sélectionnés par un champ magnétique et un champ électrique suivant leurs rapports  $A/q$  et  $E_k/q$ . Il est alors possible de mesurer les rendements de chaîne par une chambre à ionisation ou les rendements isotopiques par la collection des noyaux sélectionnés sur une bande enregistreuse puis mesure par spectrométrie gamma. Ces mesures sont bien des mesures statistiques, donc une loi de distribution normale peut leur être affectée.

Les rendements qui ne sont pas mesurés sont, dans JEFF3.1.1, déduits de la loi de Wahl [22]. En première approche, cette loi consiste à supposer que les noyaux les plus probables sont ceux ayant le même rapport « nombre de masse atomique sur charge du noyau » que celui du noyau lourd. Ensuite, pour un même nombre de masse  $A$ , les rendements de fission des noyaux sont répartis suivant une gaussienne autour du noyau de Wahl. La normalisation de la loi gaussienne est possible grâce à la mesure du rendement de fission indépendant du noyau de Wahl, et des quelques mesures de rendements de fission indépendants réalisés. Enfin, le tout est de nouveau normalisé pour que la somme des rendements soit égale à 2. L'obtention des valeurs des rendements indépendants de fission commence par des mesures de rendements indépendants de distribution gaussienne et le processus de traitement de ces valeurs n'a aucune raison de ne pas fournir de valeurs gaussiennes. En conséquence, tous les rendements de fission seront traités comme ayant des lois de distribution normales.

## **B – Justification de la loi de distribution normale pour les concentrations**

Le problème doit être traité de deux façons. Est-ce que la variance de la concentration obtenue avec la méthode de propagation des incertitudes déterministe est la même que celle obtenue par des calculs de propagation stochastique (la loi de distribution reste-t-elle gaussienne ou non) ? Est-ce que la forme de la distribution obtenue peut-être approximée à une gaussienne ?

Schématiquement, la solution de la concentration d'un produit de fission, issue des équations d'évolution, a cette forme générale :

$$\text{Pendant l'irradiation : } N(t) = \frac{YbrK}{R} e^{-Rt}$$

$$\text{Pendant le refroidissement : } N(t) = N(0) e^{-Rt}$$

Avec,

R : une variable qui représente soit un taux de réaction microscopique, soit une constante de décroissance,

Y : un rendement de fission,

br : un rapport de branchement,

K : une variable exprimant le taux de fission macroscopique d'un noyau lourd.

Les problèmes qui se posent sont les suivants :

- Toutes les variables sont des gaussiennes, qu'en est-il de leur produit ?
- R est une gaussienne, qu'en est-il de  $\exp(-Rt)$  ?
- R est une gaussienne, qu'en est-il de  $\exp(-Rt)/R$  ?

Les problèmes vont être traités très finement en ce qui concerne l'étude de la variance. Pour la comparaison de la loi de distribution de la concentration par rapport à une loi normale, cela sera étudié sur un exemple.

1) Problème de la multiplication pour l'estimation de la loi de dispersion des concentrations

Pour la multiplication, posons le problème suivant :

$$Z = X Y$$

Avec,

Z : qui peut être assimilée à la concentration,

X et Y : deux variables indépendantes

Alors, l'espérance de Z est égale à :

$$E(Z) = E(X \cdot Y) = E(X) E(Y)$$

Et la variance est égale à :

$$\begin{aligned} VAR(Z) &= E(Z^2) - E(Z)^2 \\ &= E(X^2 Y^2) - (E(X) E(Y))^2 \\ &= E(X^2) E(Y^2) - E(X)^2 E(Y)^2 \end{aligned}$$

Or,

$$E(X^2) = VAR(X) + E(X)^2$$

Donc,

$$VAR(Z) = VAR(X) VAR(Y) + E(X)^2 VAR(Y) + E(Y)^2 VAR(X)$$

Or la formule de propagation utilisée dans CYRUS ne correspond qu'aux deux derniers termes. Donc pour valider la méthode de propagation il faut montrer que :

$$VAR(X) VAR(Y) \ll E(X)^2 VAR(Y) + E(Y)^2 VAR(X)$$

Tout d'abord, la formule précédente est simplifiée en divisant le terme de gauche et le terme de droite par le produit des carrés des espérances de X et de Y. Cela permet d'obtenir une formule sur les variances en supposant les écarts-types exprimés en pourcent.

$$VAR_{\%}(X) VAR_{\%}(Y) \ll VAR_{\%}(Y) + VAR_{\%}(X)$$

Maintenant, en supposant le rapport du premier terme sur le deuxième inférieur à un critère c, il est possible d'obtenir l'écart-type de Y ( $\sigma_{\%}(Y)$ ) en fonction du critère et de  $\sigma_{\%}(X)$  :

$$\sigma_{\%}(Y) \leq \sqrt{\frac{c \sigma_{\%}(X)^2}{\sigma_{\%}(X)^2 - c}}, \quad \text{pour tout } \sigma_{\%}(X)^2 - c > 0$$

Si l'écart-type de X ne peut satisfaire le critère, alors il n'est pas possible de trouver une valeur de l'écart-type de Y qui puisse mettre en défaut l'hypothèse de départ. La **figure III.26** présente l'écart-type maximal de Y permettant de confirmer l'hypothèse en fonction du critère choisi et de l'écart-type de X. Pour un critère très restrictif de 0,01 (c'est-à-dire que le rapport du produit des variances par la somme des variances est inférieur à 1 %), les incertitudes des paramètres doivent être supérieures à 10 %. Seuls les rendements de fission et quelques sections efficaces ont des incertitudes si élevées.

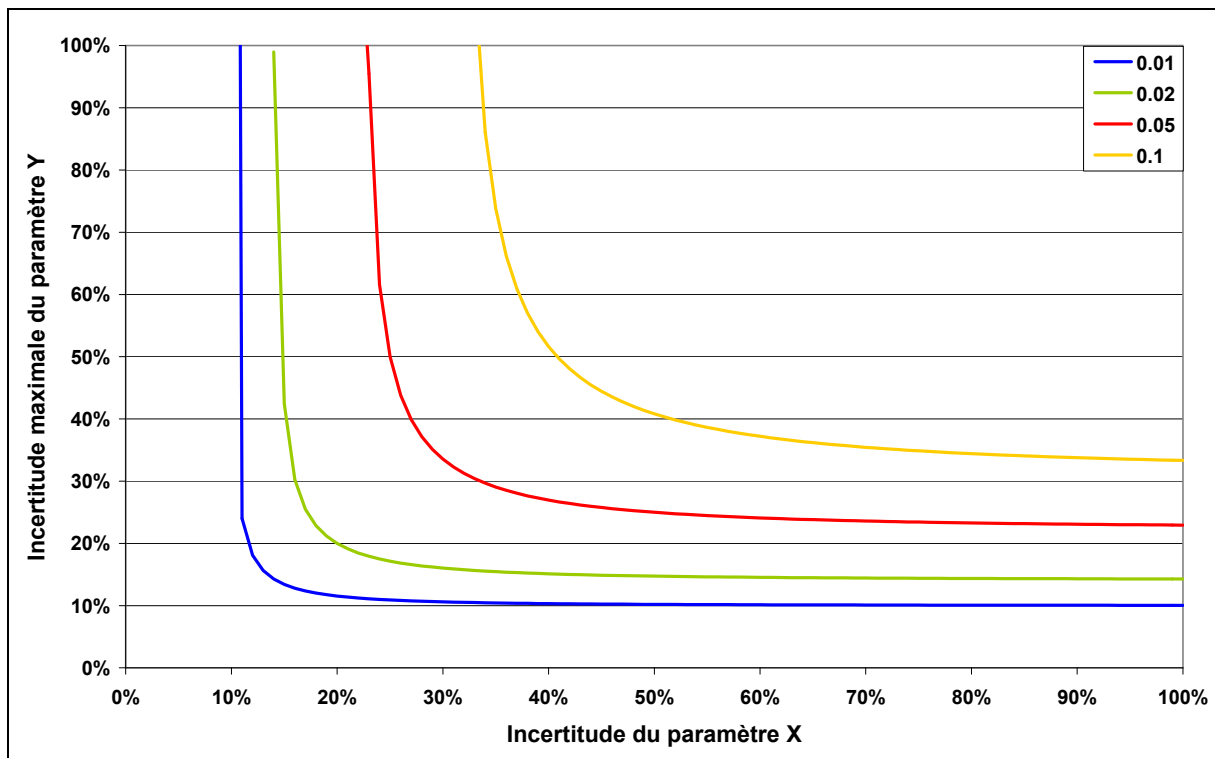


Fig. III.26 : Incertitude maximale autorisée pour le paramètre Y en fonction de l'incertitude du paramètre X suivant le critère à respecter.

De plus, pour finaliser cette étude, il est possible de lier le critère à son impact sur l'écart-type de Z. C'est ce que présente la **figure III.27**. Si le produit des variances de X et Y est égal à 10 % de la somme des variances de X et de Y, alors l'écart-type de Z est augmenté de moins de 5 % en valeur absolue quand l'écart-type de celui-ci vaut 100 %. Cet apport varie linéairement et vaut, en valeur relative, 0,05 %.



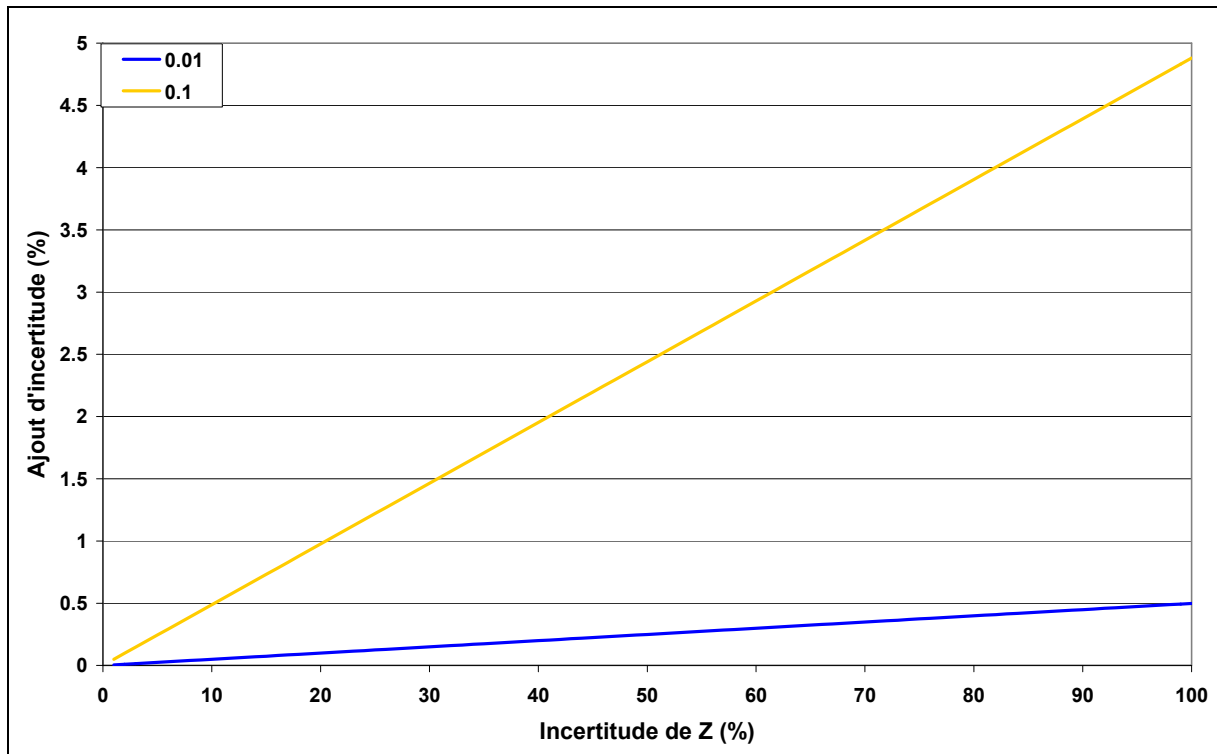


Fig. III.27 : Apport du produit des variances des paramètres X et Y sur l'écart-type de Z suivant que ce produit est égal à 1 % ou 10 % de la somme des variances.

En conséquence, le critère à sélectionner pour l'étude de la **figure III.26** peut être augmenté à 0,1. Les paramètres X et Y doivent avoir des incertitudes supérieures à 30 %. Or seuls les rendements de fission ont de telles incertitudes. La formule de propagation des incertitudes développées dans CYRUS est donc justifiée pour le calcul des incertitudes lors de produits de variables.

## 2) Problème de l'estimation de la loi de dispersion des concentrations dans le cas de l'exponentielle d'une variable gaussienne

Ce cas est lui aussi référencé, l'exponentielle d'une loi gaussienne est une loi log-normale. Prenons l'exemple suivant :

$$Z = e^x$$

### PARTIE III

Alors, l'espérance de  $Z$  est égale à :

$$E(Z) = e^{E(X) + \frac{1}{2}VAR(X)}$$

Et la variance de  $Z$  est égale à :

$$VAR(Z) = (e^{VAR(X)} - 1) e^{2E(X) + VAR(X)}$$

Or, la valeur de l'espérance calculée avec CyRUS est :

$$E(Z) = e^{E(X)}$$

Et la valeur de la variance obtenue par la propagation des incertitudes dans CyRUS est :

$$\begin{aligned} VAR(Z) &= \left( \left. \frac{dZ}{dX} \right|_{E(X)} \right)^2 VAR(X) \\ &= e^{2E(X)} VAR(X) \end{aligned}$$

Il faut s'assurer que l'écart des deux premiers moments calculés avec la méthode de propagation ne soit pas trop important par rapport aux vrais moments. Puisque c'est la méthode de propagation des incertitudes qui va être utilisée, il est normal de présenter l'écart relatif suivant la méthode de propagation, autrement dit, l'écart est calculé en mettant les moments obtenus par la méthode de propagation des incertitudes au dénominateur.

$$\begin{aligned}
ECART(Espérance) &= \frac{E_{exacte}(Z)}{E_{propagation}(Z)} - 1 \\
&= \frac{e^{E(X) + \frac{1}{2}VAR(X)}}{e^{E(X)}} - 1 \\
&= e^{\frac{1}{2}VAR(X)} - 1 \\
&= \left(1 + \frac{1}{2}VAR(X) + \frac{1}{8}VAR(X)^2 + o(VAR(X)^2)\right) - 1 \\
&= \frac{1}{2}VAR(X) + \frac{1}{8}VAR(X)^2 + o(VAR(X)^2) \\
&= \frac{1}{2}E(X)^2 \sigma_r(X)^2 + \frac{1}{8}E(X)^4 \sigma_r(X)^4 + o(VAR(X)^2)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
ECART(Variance) &= \frac{VAR_{exacte}(Z)}{VAR_{propagation}(Z)} - 1 \\
&= \frac{(e^{VAR(X)} - 1)e^{2E(X) + VAR(X)}}{VAR(X)e^{2E(X)}} - 1 \\
&= \frac{(e^{VAR(X)} - 1)e^{VAR(X)}}{VAR(X)} - 1 \\
&= \frac{\left(VAR(X) + \frac{1}{2}VAR(X)^2 + \frac{1}{6}VAR(X)^3 + o(VAR(X)^3)\right) \left(1 + VAR(X) + \frac{1}{2}VAR(X)^2 + o(VAR(X)^2)\right)}{VAR(X)} - 1 \\
&= \left(1 + \frac{1}{2}VAR(X) + \frac{1}{6}VAR(X)^2 + o(VAR(X)^2)\right) \left(1 + VAR(X) + \frac{1}{2}VAR(X)^2 + o(VAR(X)^2)\right) - 1 \\
&= \frac{3}{2}VAR(X) + \frac{7}{6}VAR(X)^2 + o(VAR(X)^2) \\
&= \frac{3}{2}E(X)^2 \sigma_r(X)^2 + \frac{7}{6}E(X)^4 \sigma_r(X)^4 + o(VAR(X)^2)
\end{aligned}$$

Avec,

$\sigma_r(X)$  : l'écart-type relatif de la variable X.

Il est pratique de présenter ces deux écarts avec l'espérance et l'écart-relatif de la variable. Ainsi, il est possible de remarquer que l'écart de calcul des moments, en supposant que l'exponentielle peut être traitée comme une gaussienne, augmente avec l'espérance de X (sa valeur moyenne) et son écart-type relatif.

Or, en irradiation, seules les sections efficaces et les constantes de décroissance apparaissent dans l'exponentielle, et en refroidissement, seules les constantes de décroissance apparaissent. La forme de l'exponentielle, écrite pour la constante de décroissance (l'écriture pour les sections efficaces est similaire) est la suivante :

$$e^X = e^{-\lambda t}$$

Or, il est possible de relier les moments de X à ceux de la donnée nucléaire, en supposant que les deux variables suivent des lois gaussiennes, et de montrer que l'écart-type relatif de la variable X est égal à l'écart-type relatif de la donnée nucléaire.

$$\begin{aligned} E(X) &= -t E(\lambda) \\ VAR(X) &= t^2 VAR(\lambda) \\ \sigma_r(X) &= \frac{VAR(X)}{E(X)^2} = \frac{t^2 VAR(\lambda)}{(-t E(\lambda))^2} = \sigma_r(\lambda) \end{aligned}$$

De plus, il a été montré dans le paragraphe I.B.1 que, durant le refroidissement l'impact d'un noyau sur l'incertitude de la puissance dure 5 fois son temps caractéristique. Ce temps est aussi applicable en irradiation. Après ce temps, le noyau ne contribue plus à l'incertitude de la puissance résiduelle en refroidissement, et l'exponentielle ne contribue plus à l'évolution du noyau en irradiation.

D'après les expressions des écarts de moments, celui-ci est maximal quand l'espérance de la variable X est la plus grande. Il est donc possible de tracer l'écart maximal sur l'espérance (voir **figure III.28**) et la variance (voir **figure III.29**) de Z suivant l'écart-type de la donnée nucléaire et le temps caractéristique.

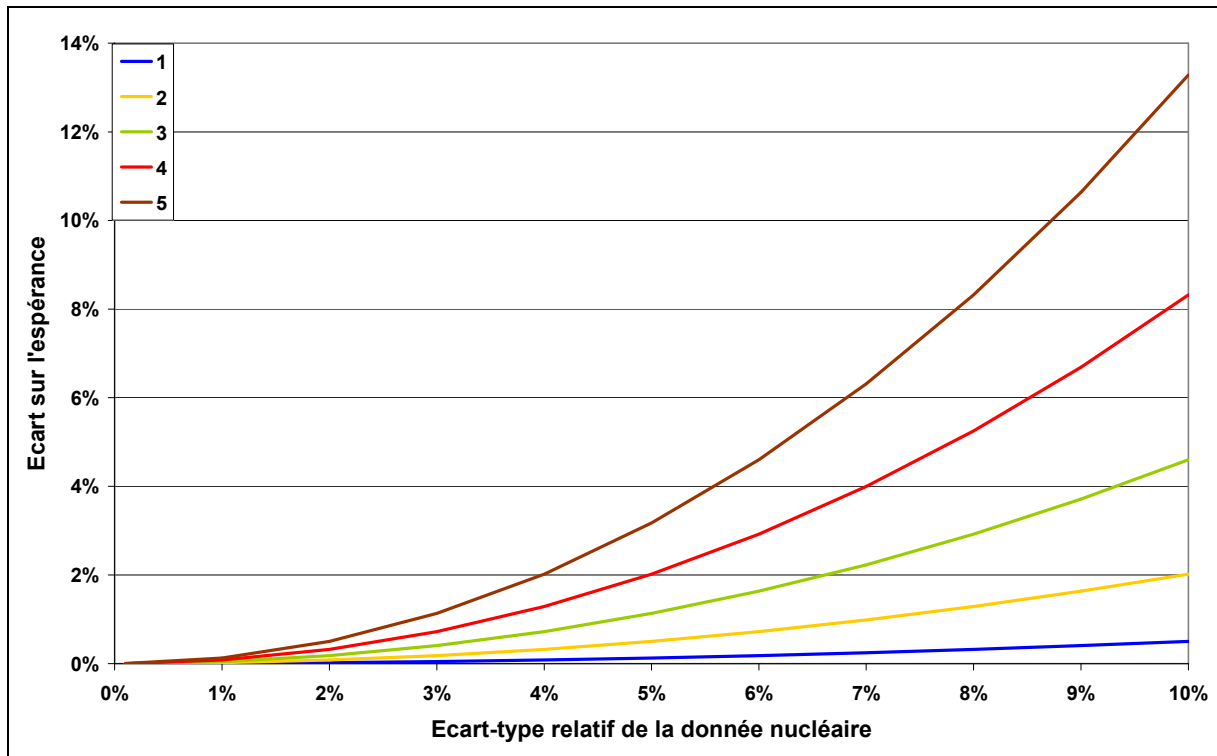


Fig. III.28 : Ecart sur l'espérance du résultat suivant l'écart-type relatif de la donnée nucléaire pour différents temps caractéristiques.

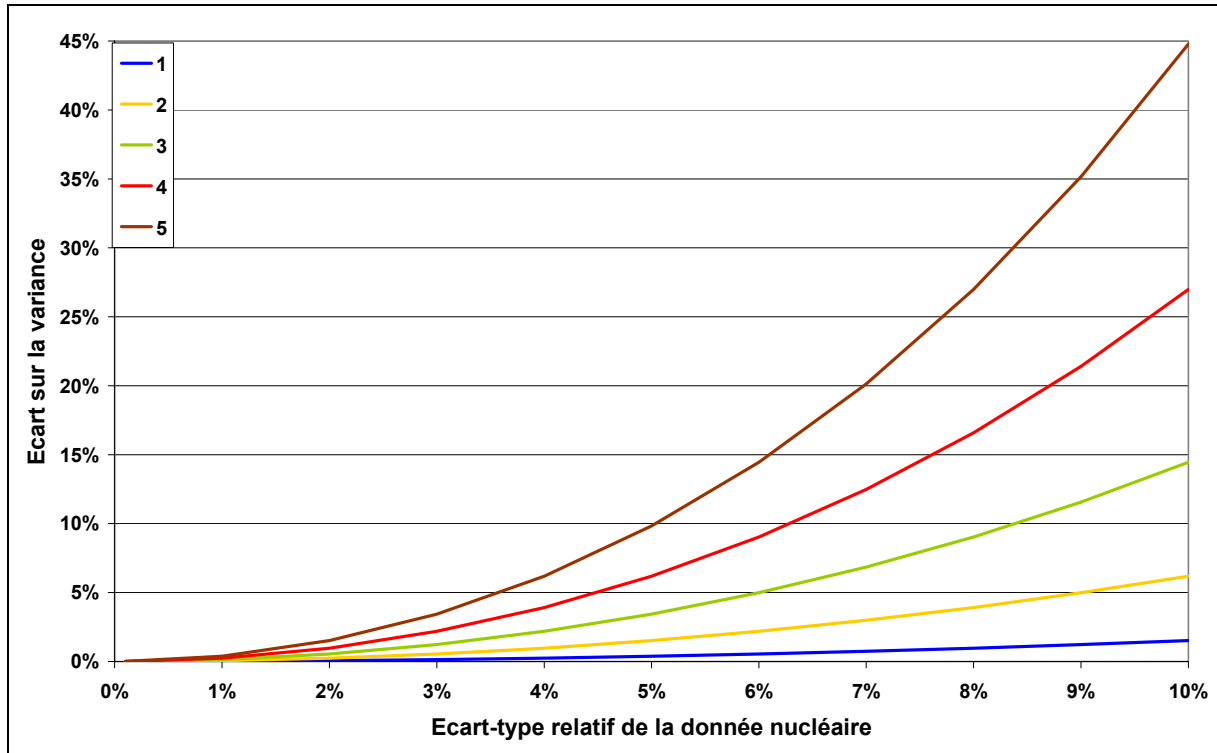


Fig. III.29 : Ecart sur la variance du résultat suivant l'écart-type relatif de la donnée nucléaire pour différents temps caractéristiques.

Sur les deux figures, l'écart augmente fortement avec l'écart-type relatif et avec l'espérance de  $X$  (= le temps caractéristique). Sachant que l'impact le plus fort sur la variance de la puissance résiduelle correspond à des temps caractéristiques compris entre 1 et 3, et que les périodes sont bien connues (incertitude inférieure à 5 % pour les noyaux dont la période est supérieure à 100 secondes), l'écart relatif sur la variance et sur l'écart-type sont suffisamment faibles pour considérer que la loi de distribution du résultat est une gaussienne.

Néanmoins, pour des contributions plus faibles (temps caractéristique supérieur à 3) et pour des données moins bien connues (périodes très courtes, certaines sections efficaces), il peut y avoir un écart non négligeable sur le calcul de la variance.

Les résultats seront donc supposés gaussiens, en gardant à l'esprit que des écarts faibles pourraient être observés entre la méthode présentée et les méthodes stochastiques.

### 3) Problème de l'estimation de la loi de dispersion des concentrations dans le cas du rapport de l'exponentielle d'une variable gaussienne sur la même variable gaussienne

Il n'est pas possible d'étudier aussi finement que pour les problèmes précédents l'impact de cette fonction sur la loi de dispersion car il n'est pas possible d'obtenir analytiquement une valeur de la moyenne et de la variance. Ce problème sera donc revu au cours de l'étude de la loi de dispersion dans le paragraphe suivant.

### 4) Etude de la forme de la loi de dispersion de la concentration

Pour étudier la forme de la loi de dispersion, des calculs sont réalisés avec une méthode probabiliste. Les données nucléaires sont échantillonnées ce qui permet d'obtenir un histogramme de la dispersion de la concentration. Cet histogramme est ensuite comparé à une gaussienne dont les paramètres (moyenne, écart-type) sont calculés avec le code CYRUS.

Le cas concret choisi pour cette étude est l'évolution, sous irradiation et en refroidissement, de la concentration du  $^{89}\text{Kr}$ . Ce cas est le plus représentatif pour l'ensemble des noyaux

intervenant dans le calcul de la puissance résiduelle. Il est aussi très représentatif en ce qui concerne l'incertitude de ses données nucléaires.

Pour le cas sous irradiation, il est supposé que le  $^{89}\text{Kr}$  provient uniquement de la fission du  $^{239}\text{Pu}$  et qu'il disparaît par décroissance. Alors, la formule d'évolution de sa concentration s'écrit :

$$N_{^{89}\text{Kr}}(t) = \frac{Y_{^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{89}\text{Kr}}^i \sigma_{^{239}\text{Pu}}^f \phi N_{^{239}\text{Pu}}}{\lambda_{^{89}\text{Kr}}} \left(1 - e^{-\lambda_{^{89}\text{Kr}} t}\right)$$

Avec,

$Y_{^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{89}\text{Kr}}^i$  : Rendement de fission indépendant du  $^{239}\text{Pu}$  vers le  $^{89}\text{Kr}$  ( $1,035 \cdot 10^{-2} \pm 14\%$ ),

$\sigma_{^{239}\text{Pu}}^f \phi N_{^{239}\text{Pu}}$  : Taux de fission macroscopique du  $^{239}\text{Pu}$  ( $5,49218 \cdot 10^{28} \pm 5\%$  incertitude surestimée pour ce calcul),

$\lambda_{^{89}\text{Kr}}$  : Constante de décroissance du  $^{89}\text{Kr}$  ( $\ln(2)/189 \pm 1,27\%$ ),

$t$  : Temps d'irradiation (égal à 10 secondes ou 1 000 secondes afin que le noyau soit non saturé ou saturé).

La **figure III.30** présente le résultat de la distribution après 10 secondes d'irradiation, et la **figure III.31** après 1 000 secondes d'irradiation.

La loi de distribution normale ajuste correctement l'histogramme obtenu par la méthode probabiliste dans les deux figures. De plus, les écarts-types provenant des deux calculs sont bien équivalents.

Dans la **figure III.30** et dans la **figure III.31**, l'incertitude est principalement due au rendement de fission indépendant (14 %) et une petite partie est due au taux de fission macroscopique du  $^{239}\text{Pu}$  d'après les valeurs de sensibilité du **tableau III.4**. L'impact de la constante de décroissance est visible sur la **figure III.31** (l'écart-type a augmenté de 0,4 %) car la sensibilité de la concentration à la période est plus forte quand le noyau est saturé.

### PARTIE III

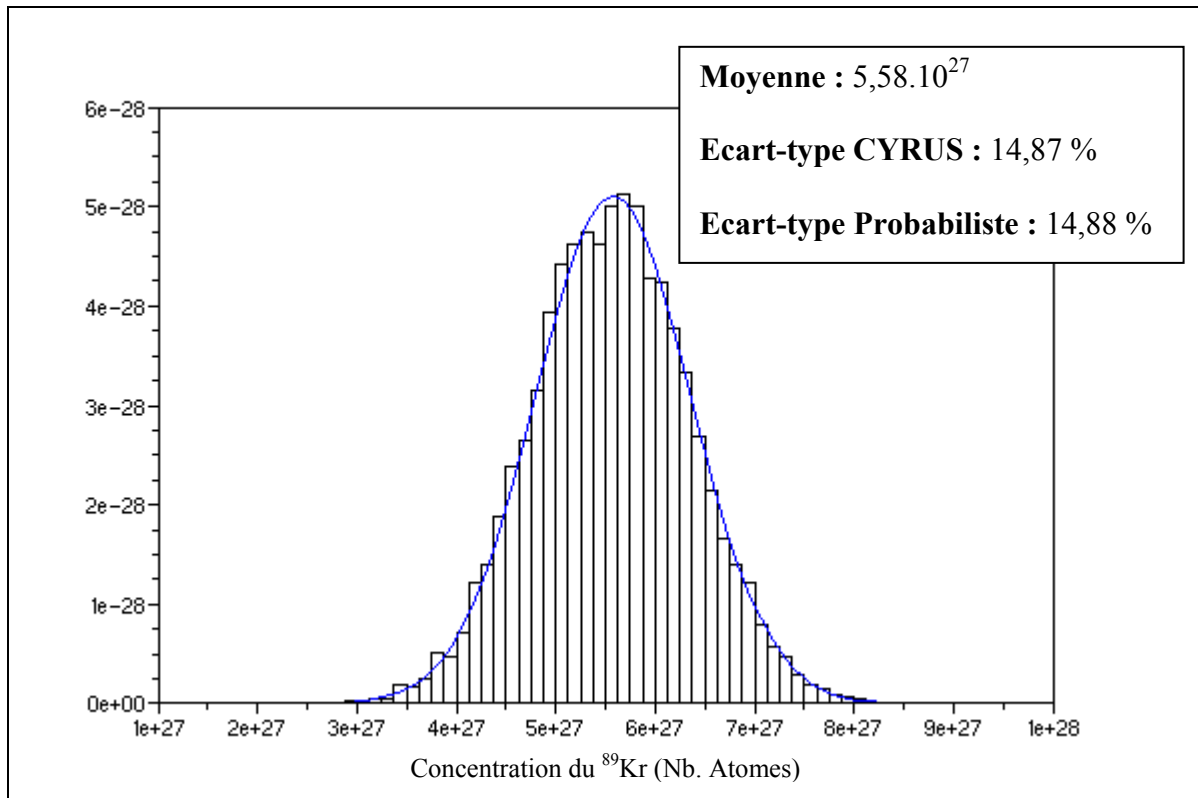


Fig. III.30 : Distribution de la concentration du  $^{89}\text{Kr}$  après 10 secondes d'irradiation.

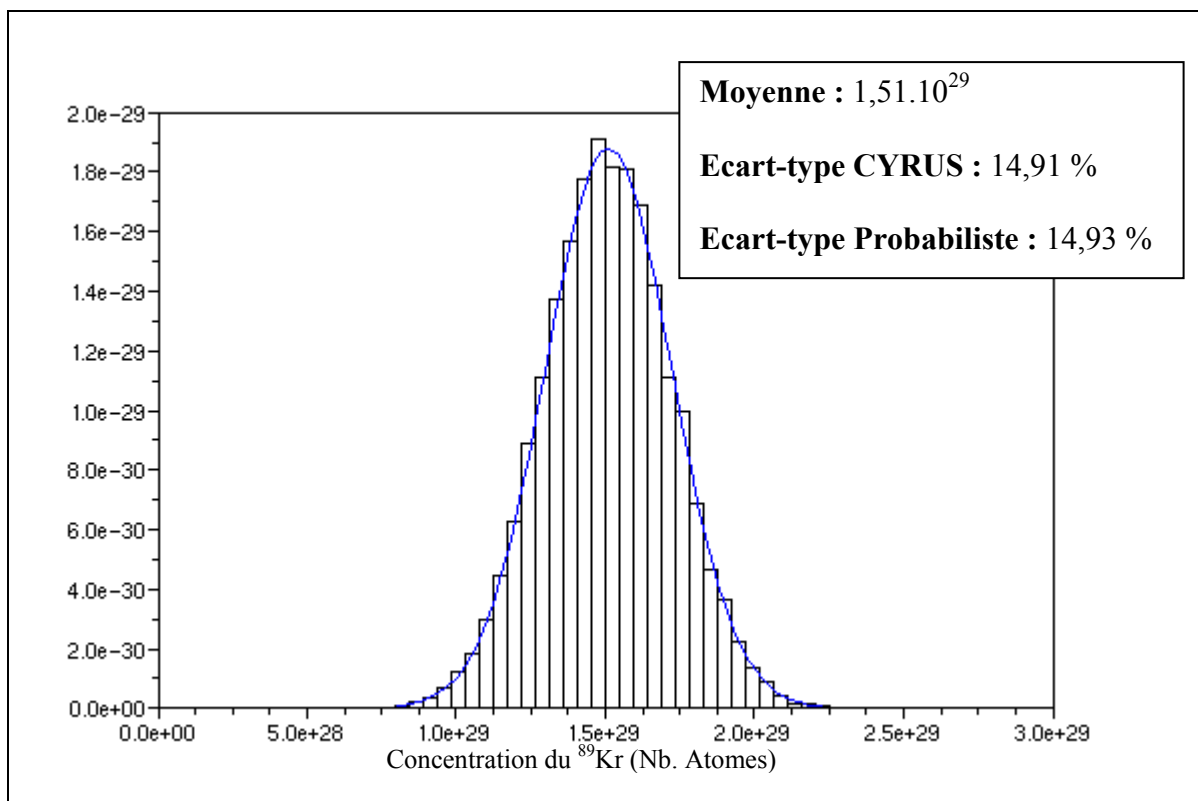


Fig. III.31 : Distribution de la concentration du  $^{89}\text{Kr}$  après 1 000 secondes d'irradiation.



### PARTIE III

t	N	S(N/Y)	S(N/ $\lambda$ )	S(N/Tx Fission)	$\sigma(N)$ %
<b>10</b>	5.581E+27	1	-0.0182	1	14.87%
<b>1000</b>	1.510E+29	1	-0.9039	1	14.91%

Tab. III.4 : Variation de la sensibilité en fonction du temps d'irradiation.

Pour le cas en refroidissement, la seule réaction est la décroissance du  $^{89}\text{Kr}$ . Alors, la formule d'évolution de sa concentration s'écrit :

$$N_{^{89}\text{Kr}}(t) = N_{^{89}\text{Kr}}(0) e^{-\lambda_{^{89}\text{Kr}} t}$$

Avec,

$N_{^{89}\text{Kr}}(0)$  : Concentration du  $^{89}\text{Kr}$  au début du refroidissement ( $1,51037 \cdot 10^{29} \pm 14,00\%$ )

$\lambda_{^{89}\text{Kr}}$  : Constante de décroissance du  $^{89}\text{Kr}$  ( $\ln(2)/189 \pm 1,27\%$ ),

t : Temps de refroidissement (égal à 10 secondes ou 1 000 secondes afin que le noyau soit encore présent ou plus qu'à l'état de traces).

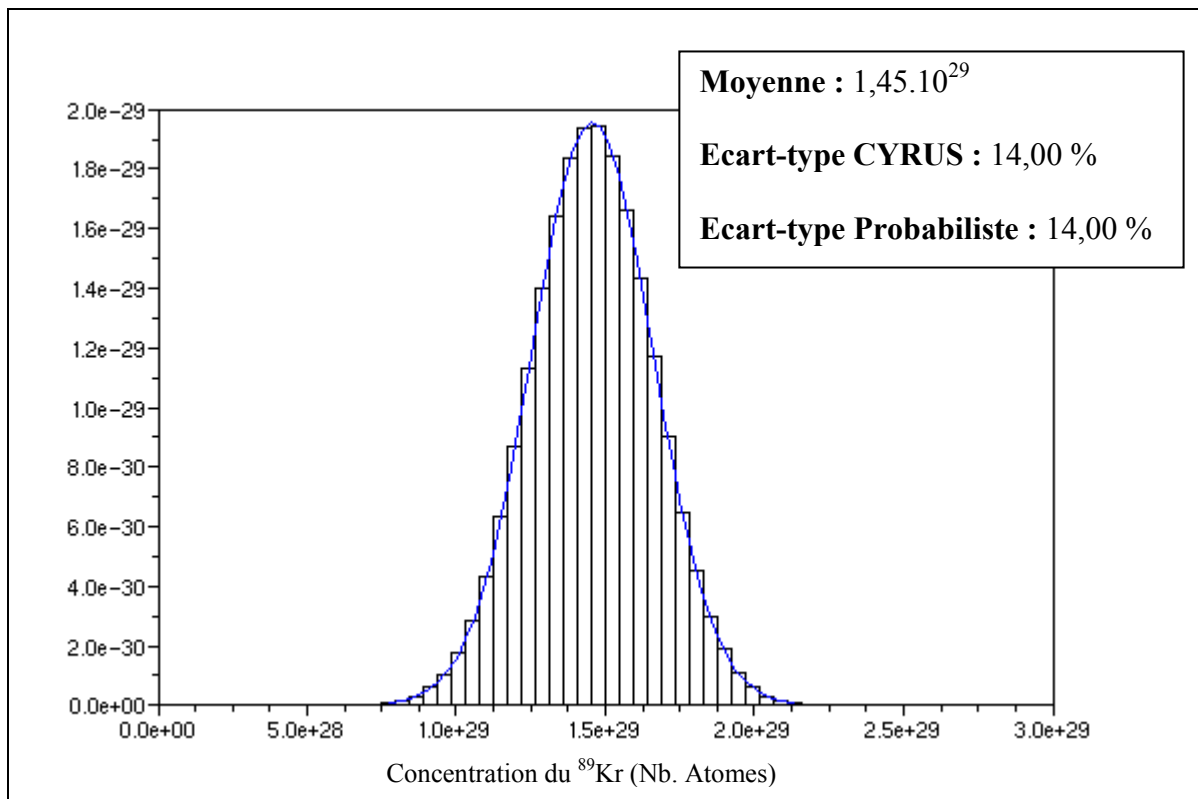


Fig. III.32 : Distribution de la concentration du  $^{89}\text{Kr}$  après 10 secondes de refroidissement.

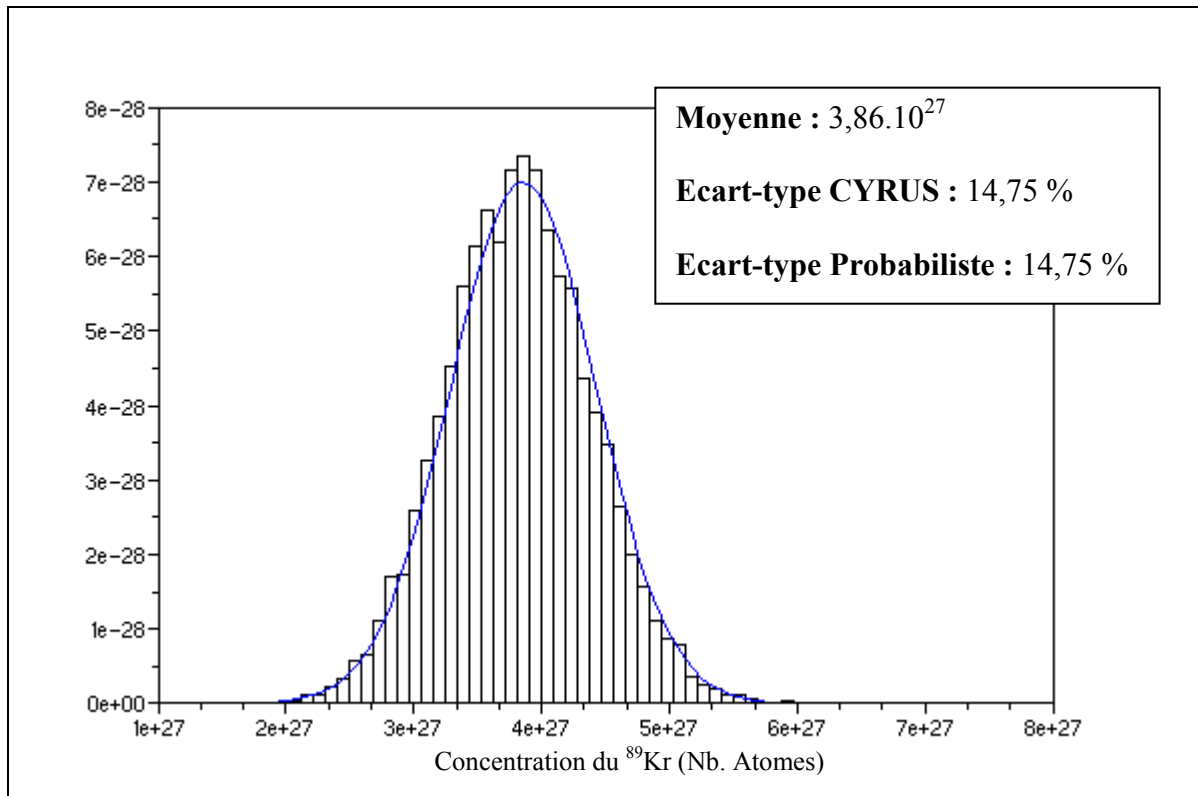


Fig. III.33 : Distribution de la concentration du  $^{89}\text{Kr}$  après 1 000 secondes de refroidissement.

La **figure III.32** présente le résultat de la distribution après 10 secondes de refroidissement, et la **figure III.33** après 1 000 secondes de refroidissement.

t	N	S(N/N(0))	S(N/ $\lambda$ )	$\sigma(N)$ %
<b>10</b>	1.45598E+29	1	-0.0367	14.00%
<b>1000</b>	3.85773E+27	1	-3.6674	14.75%

Tab. III.5 : Variation de la sensibilité en fonction du temps de refroidissement.

Comme précédemment, la loi de distribution normale ajuste correctement l'histogramme obtenu par la méthode probabiliste dans les deux figures, et de plus, les écarts-types provenant des deux calculs sont bien équivalents.

L'impact de la période est encore plus visible puisque la sensibilité (voir **tableau III.5**) est beaucoup plus grande. Cependant, cela n'est pas suffisant pour modifier de façon non-négligeable la forme de la loi de dispersion de la concentration.

En conséquence, la modélisation de la concentration par une loi normale est tout à fait justifiée.

### **C – Justification de la loi de distribution normale pour la puissance résiduelle**

La formule de la puissance résiduelle est la somme des produits de la concentration, de la constante de décroissance et de l'énergie de tous les noyaux. Il n'y a donc que deux cas à traiter : la somme et le produit. Or la somme de gaussiennes produit une gaussienne et il a été montré dans le paragraphe B.1 que la multiplication n'entraîne pas de biais parce que les incertitudes des variables sont trop faibles.

En effet, des calculs préliminaires montrent que l'incertitude de la concentration des noyaux est comprise entre 5 % et 15 % avec une moyenne comprise entre 8 % et 9 %. Les noyaux qui ont les incertitudes sur les concentrations les plus faibles sont des noyaux à hauts rendements de fission ou fils de noyaux à hauts rendements de fission. Les noyaux qui ont les plus fortes incertitudes sur la concentration sont les noyaux les plus éloignés de la vallée de stabilité ou aux nombres de masse les moins produits. L'incertitude moyenne des énergies et des périodes des noyaux est de 3,35 % et 2,4 % (voir chapitre 2). Ces incertitudes sont beaucoup trop faibles pour qu'il y ait un impact sur la gaussienne issue du produit de la concentration, de l'énergie et de la constante de décroissance.

Pour conclure ce paragraphe II, la preuve a été faite que la loi de distribution des données d'entrée peut être supposée gaussienne et que celle des résultats (concentration et puissance résiduelle) peut, dans la majorité des cas, être modélisée par une gaussienne.

De plus, il a été montré que le calcul de l'écart-type des concentrations des noyaux et de la puissance résiduelle tel qu'il est développé dans CYRUS est justifié : il représente bien la variance attendue par un calcul stochastique.

### III – Comparaison numérique de CYRUS par rapport à un calcul stochastique sur l'exemple de la fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$ en spectre thermique

Cette partie traite de l'étape de validation numérique du code CYRUS. Il s'agit de comparer les résultats déterministes issus de CYRUS à ceux provenant d'un code stochastique. Cependant, il n'existe pas encore de code stochastique validé pour les calculs de l'incertitude de la puissance résiduelle.

Le couplage URANIE/MENDEL, réalisé par le DM2S/SERMA et le DM2S/SFME, a suffisamment été développé durant ma thèse pour proposer une première évaluation de l'incertitude de la puissance résiduelle sur un cas test [26] : la fission élémentaire thermique de l' $^{235}\text{U}$ . Ce test permet de réaliser une comparaison préliminaire des deux méthodes.

#### A – Mise en place des calculs

Que ce soit pour le calcul réalisé avec le couplage URANIE/MENDEL ou celui réalisé avec le code CYRUS, les paramètres d'entrée sont supposés indépendants. Toutes les valeurs et incertitudes de ces paramètres proviennent de la bibliothèque européenne JEFF3.1.1.

##### 1) Données utilisées dans URANIE/MENDEL

Les données perturbées dans le couplage URANIE/MENDEL sont les rendements de fission indépendants, les énergies de décroissance et les constantes de décroissance. Tous les noyaux présents dans la bibliothèque JEFF3.1.1 sont pris en compte ainsi que toutes les réactions de décroissances radioactives.

Tous les paramètres sont échantillonnés suivant une loi normale. Cependant, cette loi étant définie sur tout l'espace des nombres réels, il est possible que l'échantillonnage produise des valeurs négatives (voir **figure III.34**) ; cette production de valeurs négatives est d'autant plus probable que la variance du paramètre est grande (ce qui est le cas pour les rendements de fission indépendants). Il a été montré [26] que dans 90 % des tirages effectués sur les

paramètres, au moins un de ces paramètres avait une valeur négative ce qui rend le tirage caduc. Il a été décidé [26] d'augmenter le nombre d'échantillonnage (10 000 réalisations) afin que les 10 % de tirages conservés (aucune valeur négative) permettent de conserver une statistique suffisante. Cependant, rejeter les jeux de données où apparaissent des valeurs de paramètres négatives, cela est équivalent à échantillonner les paramètres suivant des gaussiennes tronquées sans utiliser le formalisme des gaussiennes tronquées.

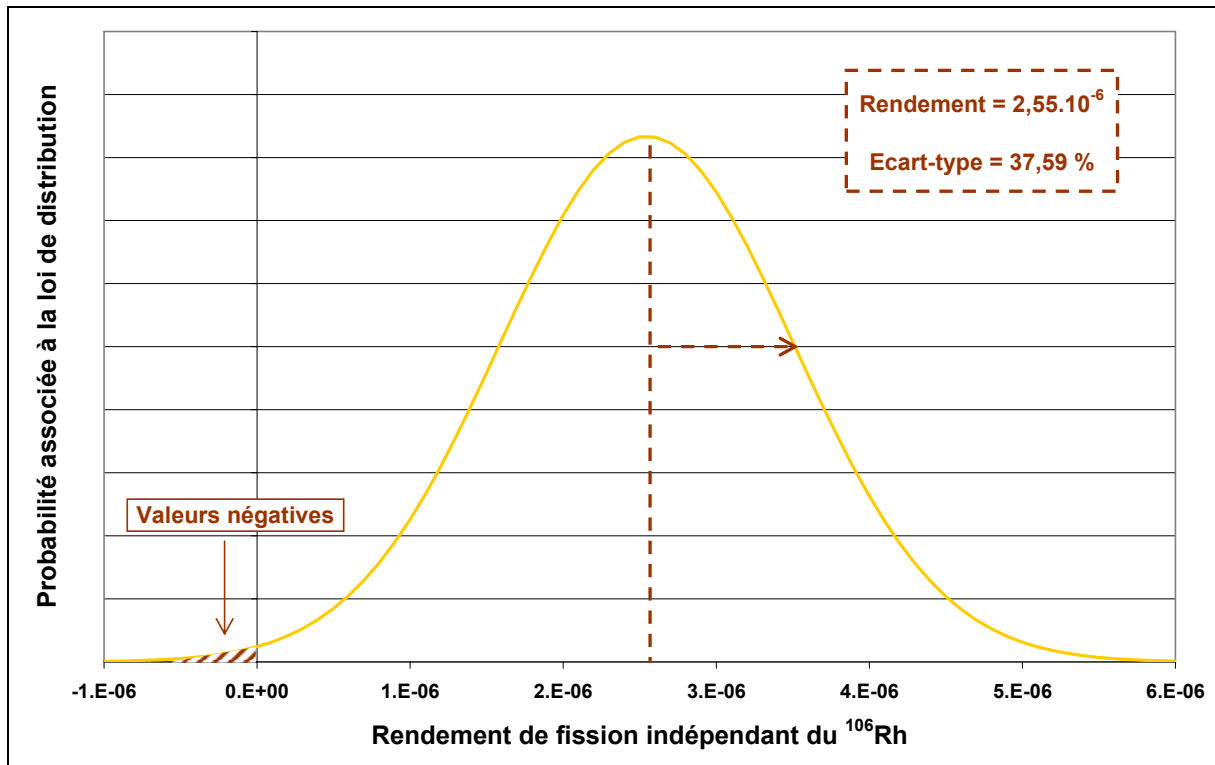


Fig. III.34 : Echantillonnage du rendement de fission indépendant du  $^{239}\text{Pu}$  vers le  $^{106}\text{Rh}$  suivant une loi de dispersion normale.

Enfin, concernant les rendements de fission une contrainte est ajoutée : elle fixe la somme des rendements indépendants égale à 2, négligeant de fait la fission ternaire qui ne représente toutefois que 0,5 % des fissions.

Le résultat du couplage URANIE/MENDEL est une distribution de la puissance résiduelle. De cette distribution sont déduits la moyenne et le domaine de confiance.

## 2) Données utilisées dans CYRUS

Les données perturbées dans le code CYRUS sont les rendements de fission indépendants, les constantes et les énergies de décroissance, les rapports de branchement (pour ceux possédant une incertitude).

A la différence du couplage URANIE/MENDEL, tous les noyaux ne sont pas traités, mais seulement les chaînes décrites précédemment. Autre différence, les valeurs des rendements de fission indépendants dans la bibliothèque JEFF3.1.1 tiennent compte de la fission ternaire.

Le code CYRUS calcule la valeur de la variance de la puissance résiduelle grâce à la formule de propagation définie au chapitre 2 avec comme données d'entrée la variance des paramètres. Afin d'associer la variance à un domaine de confiance, l'hypothèse d'une loi de distribution gaussienne de la puissance résiduelle est considérée (voir chapitre 2).

### **B – Comparaison des résultats du calcul de la puissance résiduelle**

Avant de comparer les résultats de la propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle, un résultat préliminaire est nécessaire : la comparaison des résultats de la valeur de la puissance résiduelle obtenue par les deux codes. Il est en effet important de vérifier que les deux codes utilisés obtiennent les mêmes résultats sur la valeur de la puissance résiduelle et sur la valeur de la puissance résiduelle émise par les noyaux principaux sans quoi la sensibilité de la puissance résiduelle aux données nucléaires sera différente d'un code à l'autre et en conséquence le résultat de la propagation ne sera pas comparable.

La comparaison du résultat de la valeur de la puissance résiduelle obtenue avec les codes DARWIN et URANIE/MENDEL est présentée sur la **figure III.35**. Les écarts entre les deux codes sont très faibles puisqu'ils restent inférieurs au pourcent.

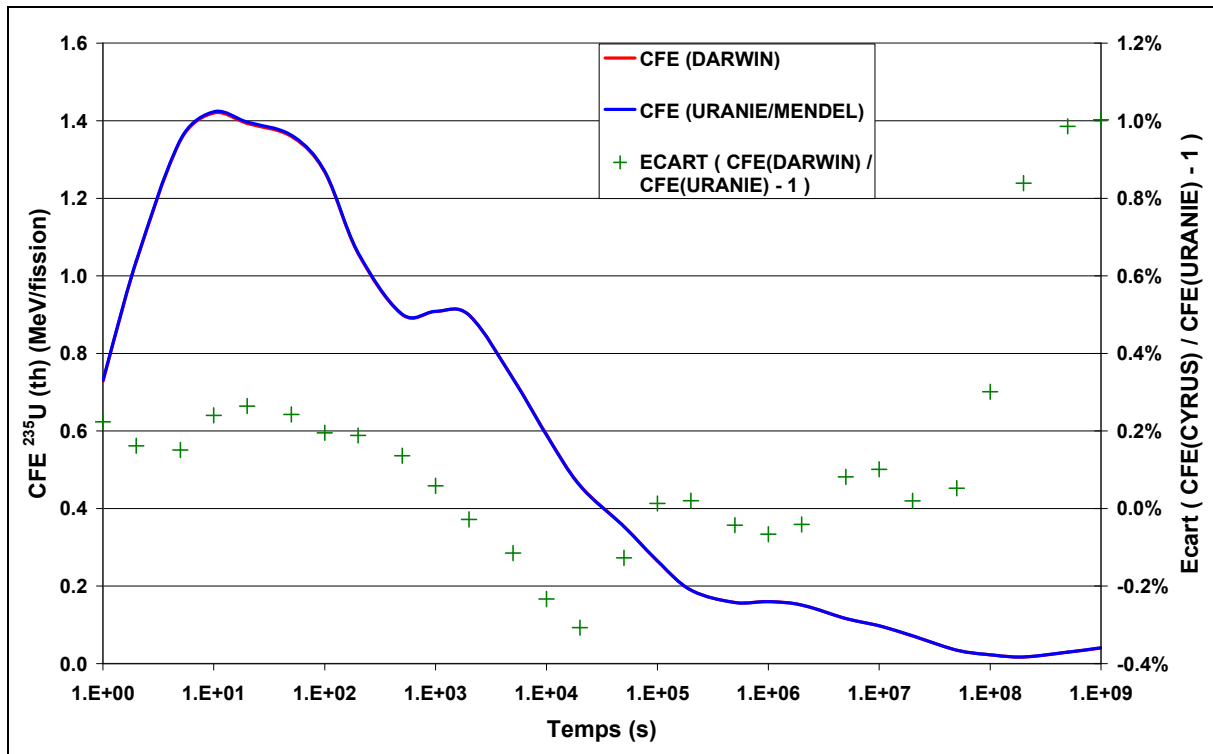


Fig. III.35 : Comparaison de la valeur de la courbe de fission élémentaire obtenue avec DARWIN et avec le couplage URANIE/MENDEL.

De plus, le document [26] donne la contribution des noyaux principaux à la puissance résiduelle après 11 jours de refroidissement ( $1.10^6$  secondes). Le **tableau III.6** présente les résultats obtenus avec les codes DARWIN et URANIE/MENDEL. Ces résultats sont clairement identiques, excepté pour le  $^{132}\text{Te}$  dont la contribution à la puissance résiduelle est faible.

Noyau	Contribution du noyau à la puissance résiduelle (%)	
	CYRUS	URANIE/MENDEL
$^{140}\text{La}$	42,72	42,70
$^{140}\text{Ba}$	6,50	6,49
$^{132}\text{I}$	15,53	15,52
$^{132}\text{Te}$	1,84	1,28

Tab. III.6 : Contribution de certains noyaux à la puissance résiduelle après 11 jours de refroidissement.

Faute de données sur la contribution des noyaux principaux à la puissance résiduelle pour d'autres temps de refroidissement concernant le couplage URANIE/MENDEL, il n'est pas possible d'investiguer plus avant la comparaison du calcul de la valeur de la puissance

résiduelle entre les deux codes. Néanmoins, la comparaison sur le résultat de la valeur totale de la puissance résiduelle et sur la contribution des noyaux principaux à la valeur de la puissance résiduelle à un temps de refroidissement montrent que les codes semblent être cohérents.

### C – Comparaison des résultats du calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle

Suite à la vérification de la cohérence des deux codes de calcul de la puissance résiduelle, les résultats de la propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle sont présentés sur la **figure III.36**. Seule la comparaison des courbes l'une par rapport à l'autre est effectuée dans ce chapitre, leur analyse physique est réalisée dans la partie IV.

Les structures qui se dessinent dans les deux courbes de la **figure III.36** sont globalement similaires. Les pics d'incertitude des deux codes sont bien observés aux mêmes temps de refroidissement.

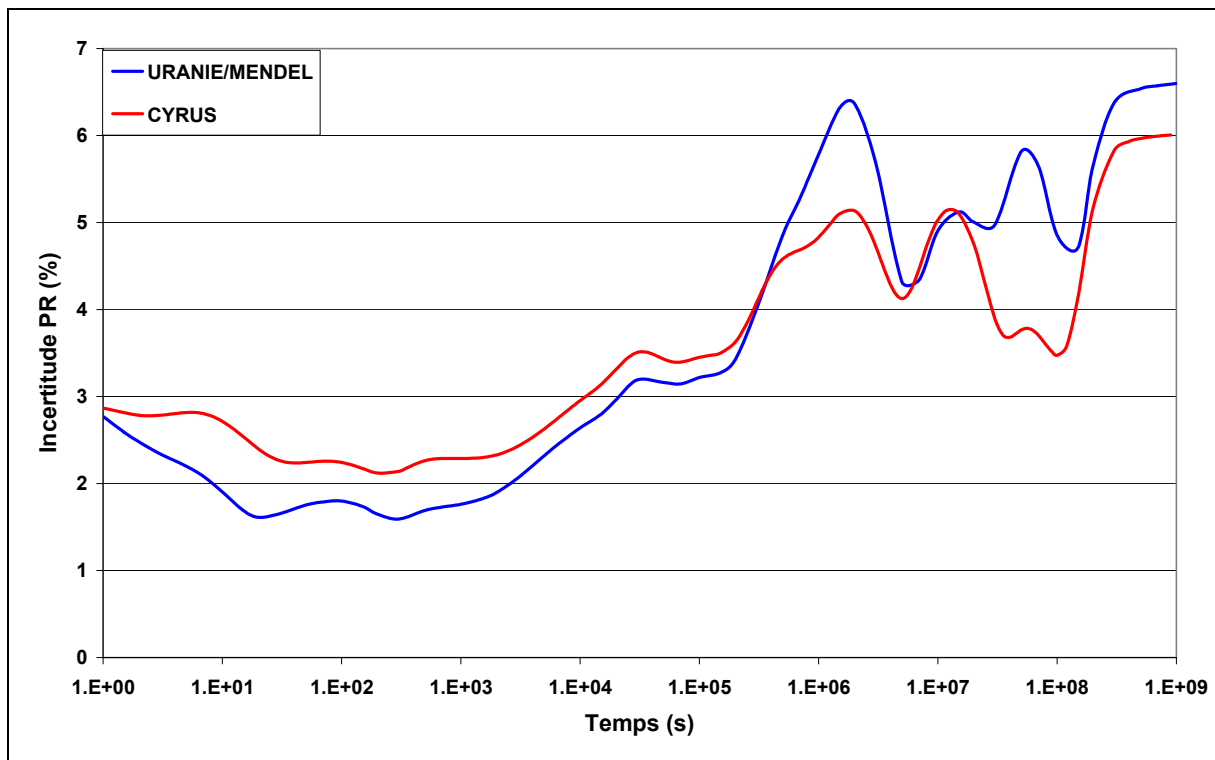


Fig. III.36 : Comparaison du résultat de la propagation des incertitudes entre CYRUS et URANIE/MENDEL pour le cas d'une fission élémentaire thermique de l' $^{235}\text{U}$ .



L'ordre de grandeur des incertitudes est globalement le même pour les deux calculs. Il est compris entre 1,5 % et 3,5 % pour les temps de refroidissement compris entre 1 seconde et  $10^5$  secondes, et entre 3,5 % et 6,5 % pour les temps refroidissement compris entre  $10^5$  secondes et  $10^9$  secondes. Cependant, le calcul déterministe propose une incertitude légèrement supérieure au calcul stochastique pendant les 5000 premières secondes de refroidissement, et inférieure après. Les plus grands écarts absolus étant respectivement de 1,2 % et 2 % d'incertitude après 22 jours ( $2 \cdot 10^6$ s) et 580 jours ( $5 \cdot 10^7$ s) de refroidissement.

Un point commun entre les deux codes est le résultat sur la répartition des incertitudes sur les paramètres (résultat non illustré dans la thèse). Quasiment toute l'incertitude provient de l'incertitude sur les rendements de fission indépendants. Les énergies et les périodes de décroissance n'ont qu'un impact minime sur le résultat (voir partie IV paragraphe III).

## **D – Analyse des écarts entre CYRUS et URANIE/MENDEL**

Deux hypothèses sont analysées pour apporter des éléments d'explication aux écarts observés. La première considère que l'écart peut provenir du nombre limité de noyaux étudiés dans CYRUS. La deuxième pose la question de la validation de l'échantillonnage réalisé dans le calcul URANIE/MENDEL, sachant que 90 % des jeux de données sont rejetés à cause de valeurs de paramètres négatives.

### **1) Analyse d'une hypothèse simplificatrice de CYRUS**

Dans CYRUS, les chaînes de décroissance ont été construites de façon à modéliser plus de 99 % de la puissance résiduelle quel que soit le temps de décroissance analysé dans la gamme de 1 seconde à  $10^9$  secondes. Le critère de sélection choisi dans les chapitres précédents permet même de représenter plus de 99,9 % de la puissance résiduelle pour les temps de refroidissement supérieurs à 100 secondes. Dans la formule de propagation des incertitudes apparaît la sensibilité de la puissance résiduelle à la puissance résiduelle libérée par chacun des noyaux :

$$S(PR / PR_i) = \frac{PR_i}{PR}$$

La somme sur tous les noyaux de la sensibilité de la puissance résiduelle d'un noyau par rapport à celle de tous les noyaux est supérieure à 0,999. Ainsi, la sensibilité manquante est inférieure à 0,001 et ne peut expliquer des écarts d'incertitude de l'ordre du pourcent.

De plus, l'hypothèse d'indépendance fait apparaître les sensibilités au carré dans la formule de propagation.

$$\text{Paramètres indépendants : } \delta PR = \sqrt{\sum_i S(PR / PR_i)^2 \delta(PR_i)^2}$$

$$\text{Paramètres corrélés positivement : } \delta PR = \sum_i S(PR / PR_i) \delta(PR_i)$$

Ainsi, les écarts entre les noyaux dont la sensibilité de leur puissance résiduelle à la puissance résiduelle totale est forte et ceux pour lesquels celle-ci est faible seront accentués. Les noyaux non-décrits dans CYRUS contribuent encore moins à l'incertitude de la puissance résiduelle quand les paramètres sont considérés indépendants.

## 2) Analyse de l'échantillonnage des paramètres avec URANIE/MENDEL

Le nombre de réalisations rejetées lors de l'échantillonnage des paramètres est très important : 90 %. Il est donc probable que la distribution de certains paramètres soit déformée (trous dans la loi de distribution...). Cela pourrait augmenter ou diminuer l'incertitude de la puissance résiduelle totale. Par exemple, si pour un paramètre toute la partie centrale de la gaussienne est rejetée (à cause des valeurs négatives échantillonnées pour d'autres paramètres), et seules restent les queues de cette gaussienne, alors la variance de paramètre est artificiellement augmentée.

Cependant, le couplage URANIE/MENDEL propose de visualiser les échantillonnages des paramètres. La **figure III.37** présente la comparaison entre les valeurs théoriques (abscisse) et échantillonnées (ordonnée) des moyennes et écarts-types des rendements de fission indépendants. Ces figures présentent bien des droites de coefficient 1 et très peu dispersées. Cela montre que l'échantillonnage semble être bien réalisé.

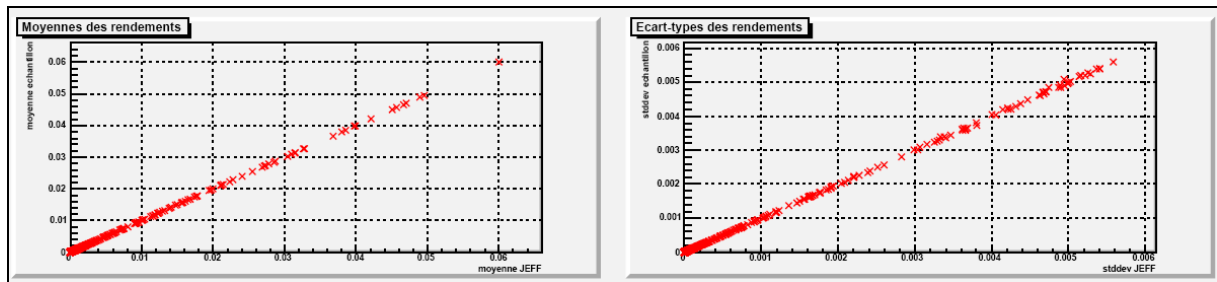


Fig. III.37 : Comparaison de la valeur moyenne et de l'écart-type des rendements de fission indépendants échantillonnés et de référence (JEFF3.1.1).

En conséquence, cette hypothèse ne peut, elle non plus, expliquer l'écart observé entre le code CYRUS et le couplage URANIE/MENDEL.

En conclusion, la comparaison préliminaire du code CYRUS et du couplage URANIE/MENDEL est très encourageante. Les ordres de grandeur et les structures de l'incertitude de la puissance résiduelle sont globalement les mêmes entre les deux codes sur le test de la fission élémentaire thermique de l' $^{235}\text{U}$ . Des hypothèses ont été testées afin d'expliquer les écarts observés mais se sont révélées infructueuses. Des investigations plus poussées sont à prévoir : impact de la prise en compte de l'incertitude des rapports de branchement dans CYRUS, de la normalisation à 2 des rendements de fission dans URANIE/MENDEL et de la corrélation entre les rendements qui en découle.

## **PARTIE IV**

# **APPLICATIONS DU CODE CYRUS**

Maintenant que le code est créé et validé (comparaison du calcul des concentrations avec le code de référence DARWIN et validation des hypothèses de linéarité et de normalité), il peut être utilisé pour calculer l'incertitude : de la puissance résiduelle au cours de l'essai PUIREX, du bilan matière dans l'essai TRAPU, et pour identifier les données nucléaires responsables de l'incertitude de la puissance résiduelle issue d'une fission de l' $^{235}\text{U}$ .

Toujours pour la fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$ , il est également possible d'analyser la précision du modèle des équations d'évolution et la précision des données nucléaires.

## **I – Evaluation de l'incertitude de la puissance résiduelle dans l'essai PUIREX**

### **A – Mise en place des jeux de données**

La puissance résiduelle dans le réacteur PHENIX est générée par plusieurs sources : les assemblages fissiles et fertiles, les assemblages placés en stockage interne, les structures des assemblages, les structures du réacteur, les assemblages de protection en graphite et en acier et enfin le sodium.

La figure II.10 de la partie II chapitre 1 montre que plus de 80 % de la puissance résiduelle provient des assemblages fissiles et fertiles. Bien que toutes les composantes de la puissance résiduelle puissent être analysées à l'aide du code CYRUS, les travaux réalisés ont été concentrés sur ces assemblages fissiles et fertiles.

Cependant, la plupart des assemblages présents dans le cœur de PHENIX ayant des historiques d'irradiation différents, il a été décidé de simplifier la représentation du cœur afin de réduire le nombre de calcul. Un assemblage de chaque milieu a été sélectionné : assemblage fissile en cœur interne, assemblage fissile en cœur externe, assemblage fertile en première couronne et assemblage fertile en deuxième couronne. Pour chacun de ces assemblages, la propagation des incertitudes a été réalisée pour les temps d'irradiation minimum, moyen et maximum. Enfin, plutôt que d'utiliser l'historique d'irradiation préparé

pour les calculs de la puissance résiduelle, tous les paliers d'irradiation ont été rassemblés en un seul.

L'hypothèse d'un unique palier d'irradiation plutôt que plusieurs séparés par des temps de refroidissement est réalisée dans le but de réduire drastiquement le temps de calcul. En effet, plutôt que de calculer l'incertitude du bilan matière sur x paliers d'irradiation et x paliers de refroidissement, il n'est réalisé qu'une seule et unique fois. Cette hypothèse simplificatrice n'est pas validée dans cette étude, il est cependant possible de donner des éléments permettant de motiver ce choix. Les paliers d'irradiation sont suffisamment longs pour reconstituer les chaînes de décroissance et saturer à nouveau les noyaux à vie courte. Les noyaux à vie longue ne vont pas être impactés par le refroidissement et leur évolution va dépendre uniquement du taux de combustion. Le plus gênant concerne les noyaux ayant des périodes qui ne leur permettent pas d'être à nouveau saturés.

La somme de ces hypothèses produit les jeux d'irradiation présentés dans le **tableau IV.1**.

Zones du cœur		C1	C2	FEF	FEG
Nombre d'assemblages		52	52	39	39
Nombre de jours d'irradiation	Moyen	436	563	900	1048
	Minimum	114	114	196	114
	Maximum	993	1350	1350	1771

Tab. IV.1 : Temps d'irradiation médian et extrêmes pour les différents types d'assemblages étudiés.

## B – Analyse des résultats des calculs d'incertitudes

### 1) Incertitude sur la puissance résiduelle des assemblages du cœur

Le calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle de chacun des jeux de données est réalisé pour les temps de décroissance suivant : 1 seconde et 12 heures de refroidissement puis pour chaque jour de refroidissement jusqu'au 12<sup>ème</sup> jour qui marque la fin de l'essai. Les résultats sont présentés sur la **figure IV.1** pour les assemblages fissiles, et sur la **figure IV.2** pour les assemblages fertiles. Aucune corrélation entre les données nucléaires n'est prise en compte.

La **figure IV.1** présente une incertitude globalement similaire de la puissance résiduelle pour les assemblages fissiles internes et pour les assemblages fissiles externes. L'incertitude est la plus forte pour des temps d'irradiation courts. Ceci n'est pas choquant puisque REBAH [1] fait la même observation à propos de l'incertitude de la puissance résiduelle dans un REP suivant le temps d'irradiation. L'explication est la suivante : le temps d'irradiation étant plus court, les noyaux très instables – dont les données nucléaires sont les plus incertaines – ont plus de poids sur la puissance résiduelle et leurs données nucléaires aussi.

La **figure IV.2** présente une incertitude plus forte que les assemblages fissiles au début du refroidissement, puis inférieure à partir du 8<sup>ème</sup> jour de refroidissement. De plus, la variation de ces incertitudes est différente de celle de la **figure IV.1** puisqu'il est clair sur les assemblages fertiles FEF que les courbes se croisent. Plusieurs éléments expliquent ces phénomènes. L'incertitude est forte au début du refroidissement parce que l' $^{239}\text{U}$  et le  $^{239}\text{Np}$  sont très largement prépondérants (voir leur formation dans la partie II chapitre 2). Or, lors d'une sommation quadratique, moins il y a de contributeur, plus l'incertitude est grande (dans le cas de corrélations nulles). Puis suivant le temps d'irradiation, les produits de fission deviennent plus ou moins rapidement prépondérants par rapport à ces noyaux lourds.

Cette dernière observation sur les produits de fission en appelle une autre. Dans la **figure IV.1** sur les assemblages fissiles, l'explication d'une incertitude plus forte pour une irradiation courte provenait des produits de fission. Or, d'après les résultats de la **figure IV.2**, dans le cas des FEF refroidis 12 jours, le phénomène est inversé : plus un assemblage est irradié longtemps, plus grande est son incertitude. Ceci provient de la différence d'impact du  $^{239}\text{Np}$  suivant le temps d'irradiation des assemblages fertiles. Au bout de 12 jours de refroidissement, les produits de fission ne sont pas encore prépondérants dans l'assemblage fertile irradié 196 jours alors qu'ils le sont dans l'assemblage irradié 1350 jours. Il est fort probable, qu'une fois tout le  $^{239}\text{Np}$  décru, l'évolution de l'incertitude de la puissance résiduelle des assemblages fertiles soit similaire à celle des assemblages fissiles.

## PARTIE IV

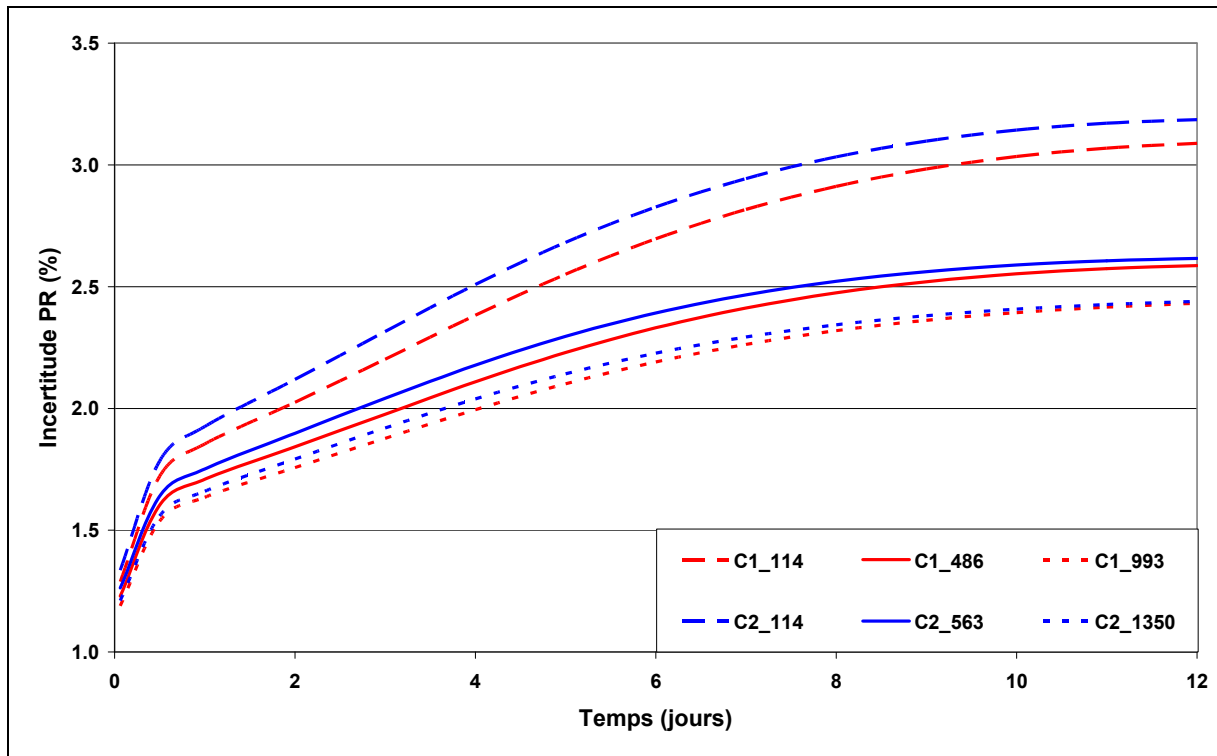


Fig. IV.1 : Incertitude de la puissance résiduelle provenant des assemblages fissiles.

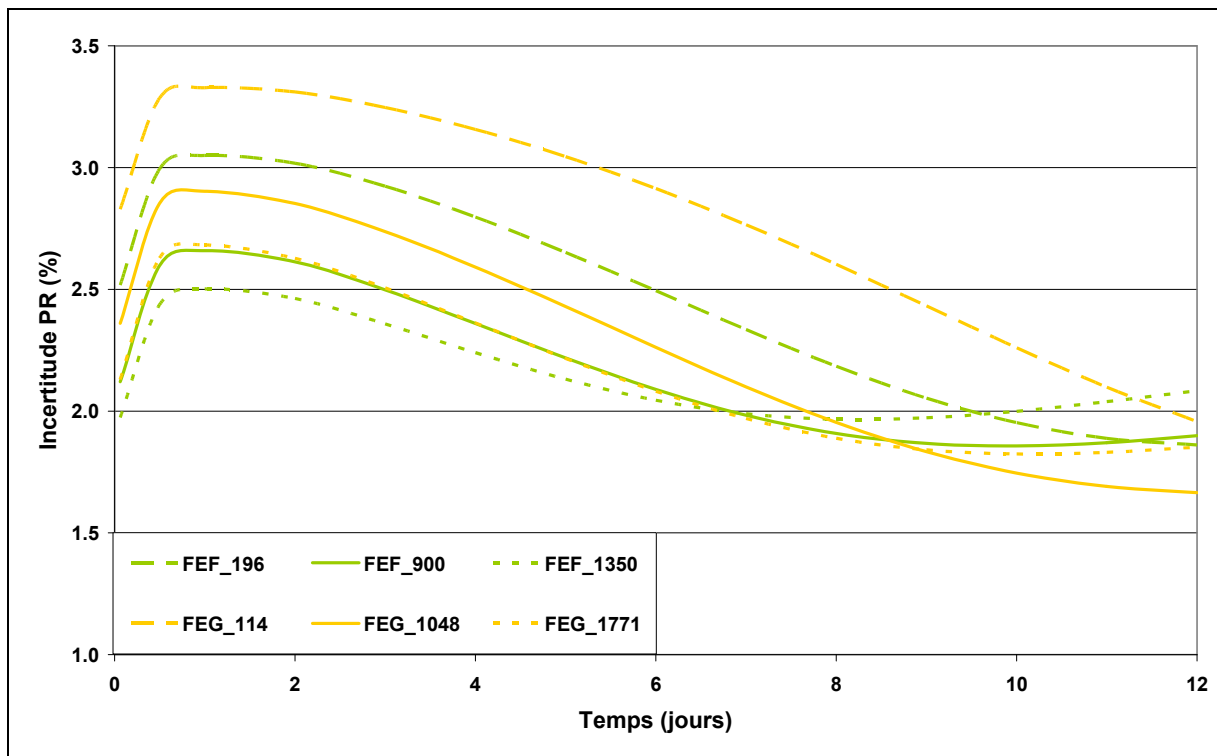


Fig. IV.2 : Incertitude de la puissance résiduelle provenant des assemblages fertiles.



## 2) Incertitude sur la puissance résiduelle des assemblages placés en stockage interne

Les assemblages placés en stockage interne sont des assemblages fissiles C1 et C2 en cours de refroidissement et pour quelques uns en attente d'être chargés (= neufs). Ils ont subi par le passé une irradiation similaire aux assemblages modélisés précédemment, mais ont des temps de refroidissement plus longs.

Les jeux de données présentés dans le **tableau IV.2** correspondent aux temps d'irradiation et de refroidissement subis par ces assemblages. Les données de spectre, de flux et de sections efficaces auto-protégées utilisées pour le calcul des incertitudes de ces assemblages sont les mêmes que pour les assemblages C1 et C2.

Type d'assemblage	Temps d'irradiation (jours)	Temps de refroidissement (jours)
C1	483	289
	550	413
C2	525	289
	834	413
		839

Tab. IV.2 : Historique d'irradiation des assemblages placés en stockage interne.

Les incertitudes de la puissance résiduelle pour ces différents jeux de données sont similaires (voir **figure IV.3**). Celles-ci sont autour de 4 % c'est-à-dire peu un plus grandes que celles des assemblages du cœur.

Les incertitudes de ces assemblages sont à combiner de façon algébrique. En effet, une corrélation totale est supposée entre ces assemblages car leurs incertitudes proviennent des mêmes données nucléaires. La somme des incertitudes n'est donc qu'une moyenne des valeurs d'incertitude présentées dans la **figure IV.3**. Cependant, afin d'être conservatif, la valeur de 5 % d'incertitude est choisie pour les différents temps de refroidissement.

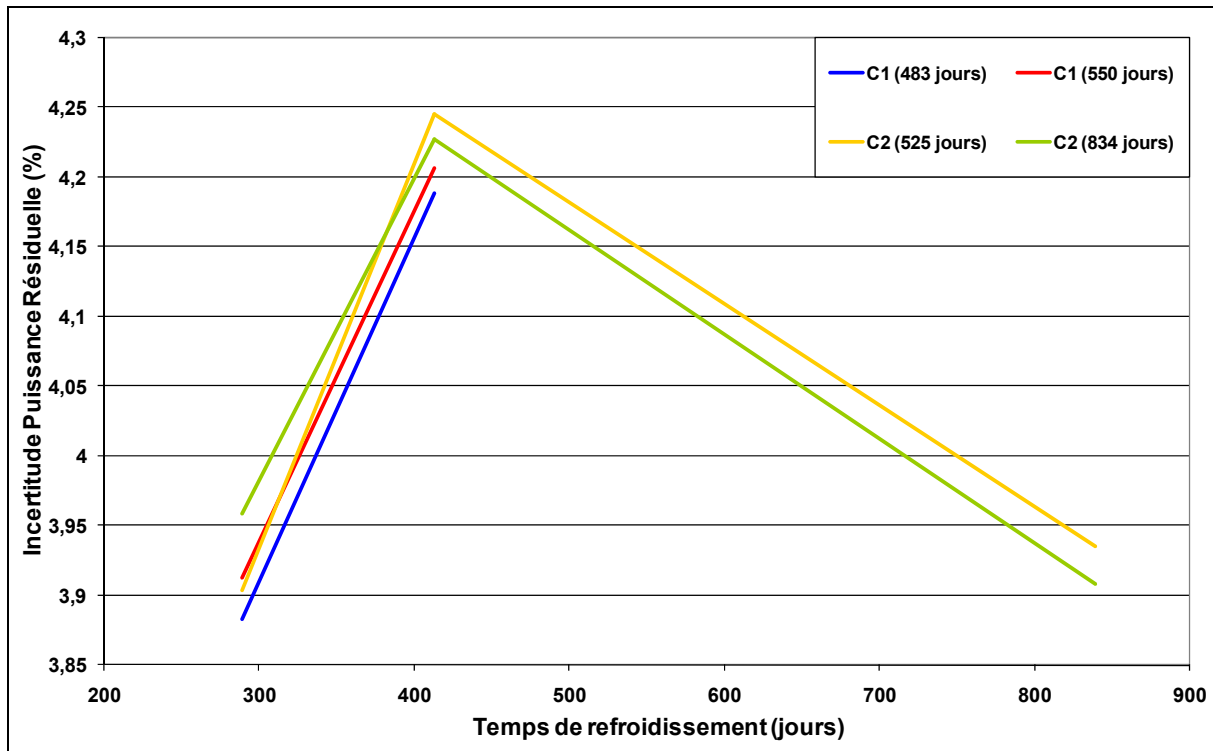


Fig. IV.3 : Incertitude de la puissance résiduelle des assemblages placés en stockage interne.

### 3) Incertitude de la puissance résiduelle du réacteur

Suite au calcul des incertitudes des différents assemblages, il est possible, connaissant la contribution des assemblages à la puissance résiduelle, d'obtenir l'incertitude totale de la puissance résiduelle modélisée de l'essai PUIREX. Sont aussi ajoutées les contributions des assemblages en stockage interne et les protections neutroniques latérales. D'après le paragraphe précédent, l'incertitude des assemblages en stockage interne est égale à 5 %. Concernant les protections neutroniques latérales, l'incertitude est portée à 50 % d'après les recommandations [communication interne]. Une telle incertitude s'explique par de multiples facteurs : connaissance peu précise des sections efficaces des  $^{59}\text{Co}$  et  $^{62}\text{Ni}$ , du flux neutronique ( $\pm 50\%$ ), du spectre, ainsi que des concentrations de ces noyaux ( $\pm 50\%$ ) car ils ne sont présents qu'à l'état de traces.

Ce calcul s'effectue avec la même équation de propagation qu'utilisée précédemment. Les incertitudes des assemblages C1, C2, FEF et FEG sont totalement corrélées car elles proviennent des mêmes données nucléaires. Par contre, les incertitudes des assemblages en stockage interne et celles des protections neutroniques latérales mettent en jeu des données nucléaires différentes. Ces incertitudes sont considérées totalement décorrélées.

Les coefficients de sensibilités ont été calculés dans la partie II chapitre 1 et sont représentés sur la figure II.10.

L'incertitude de la puissance résiduelle, si seuls les assemblages C1, C2, FEF, FEG sont pris en compte ou si les stockages internes et protections neutroniques latérales sont prises en compte, est représentée sur la **figure IV.4**. La comparaison de la puissance résiduelle mesurée et calculée est présentée sur la **figure IV.5** en considérant l'incertitude de calcul la plus grande.

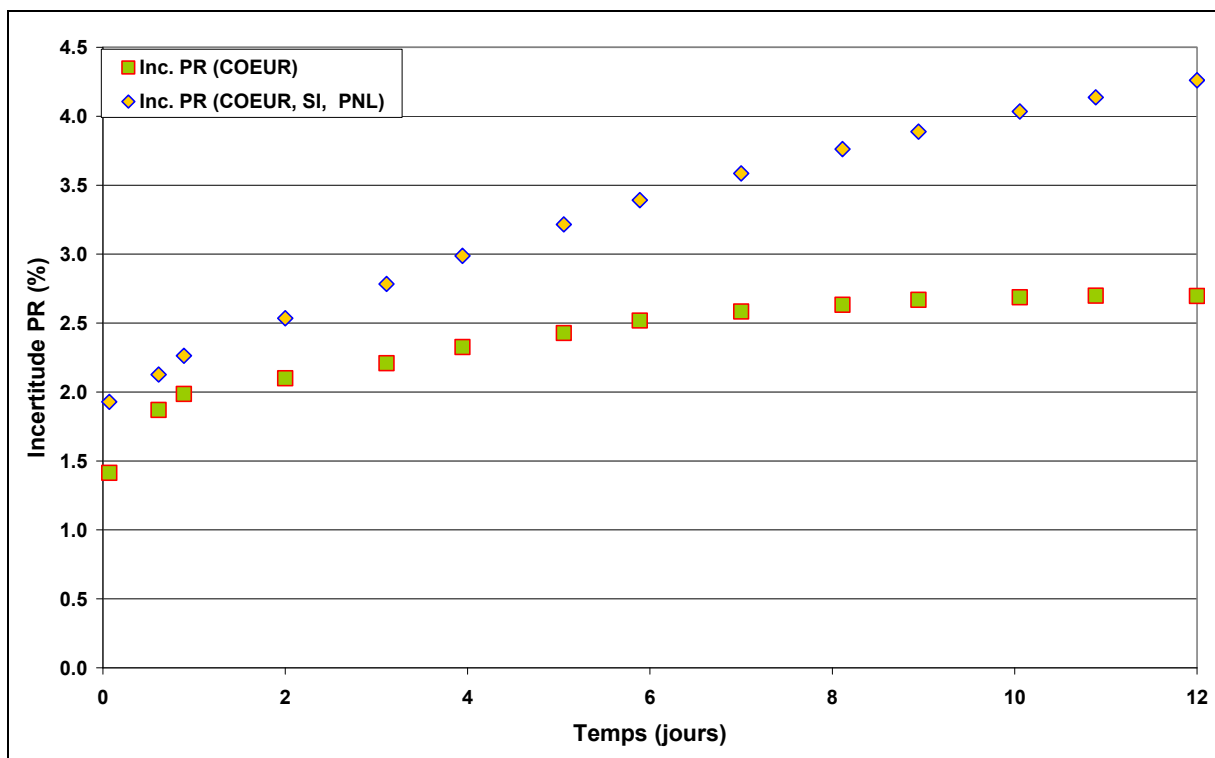


Fig. IV.4 : Incertitude de la puissance résiduelle de calcul due aux données nucléaires (CŒUR : Assemblages fissiles et fertiles, SI : Stockage interne, PNL : Protections neutroniques Latérales (Assemblages graphite et acier + Rondins d'acier + Sommier + Faux-Sommier)).

D'après la **figure IV.4**, l'incertitude de la puissance résiduelle totale calculée avec DARWIN et la bibliothèque JEFF3.1.1, et selon la modélisation réalisée dans cette étude, est comprise entre 2 % et 4,5 %. L'écart entre les deux courbes de cette même figure montre à quel point la prise en compte des incertitudes provenant des protections neutroniques latérales est très

importante pour la fin de l'expérience. Ceci permet de conclure sur la nécessité d'avoir des données nucléaires fiables pour les produits d'activation.

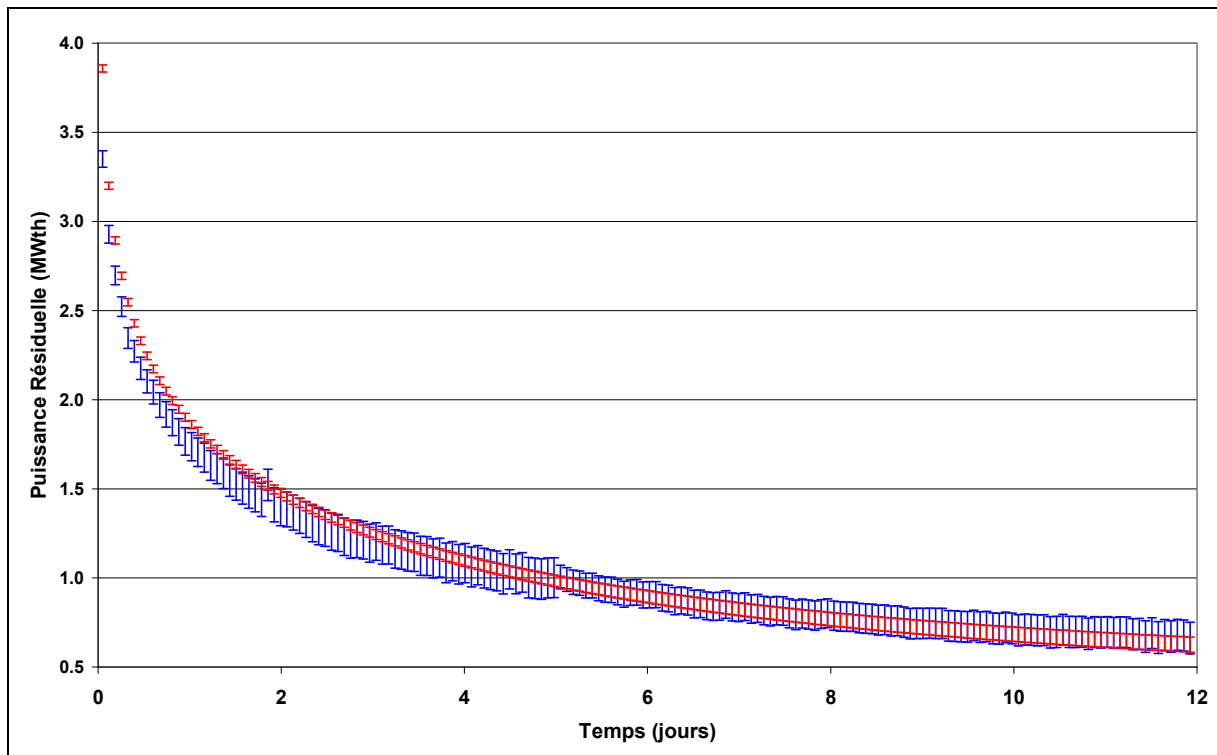


Fig. IV.5 : Comparaison de la puissance résiduelle expérimentale issue de l'essai PUIREX 2008 avec le calcul (bleu : expérimentale, rouge : calcul).

La **figure IV.5** présente une très bonne cohérence entre le calcul et la mesure puisque les barres d'incertitudes se recoupent. Cependant, le grossissement de cette courbe, comme présenté sur la **figure IV.6**, montre aussi qu'un écart important existe pendant les deux premiers jours de refroidissement (surestimation de la puissance résiduelle par le calcul) et que celui-ci ne peut pas être expliqué par l'incertitude des données nucléaires. Il est cependant rassurant, en terme de sûreté nucléaire, que le calcul surestime la puissance résiduelle plutôt qu'il ne la sous-estime. Enfin, le grossissement de la **figure IV.7** permet d'être légèrement moins critique que précédemment en ce qui concerne le biais croissant sur l'écart calcul/mesure (voir **figure II.7**). La forte incertitude, associée à la mesure, ne permet pas de rejeter la modélisation de la puissance résiduelle des derniers jours du refroidissement.

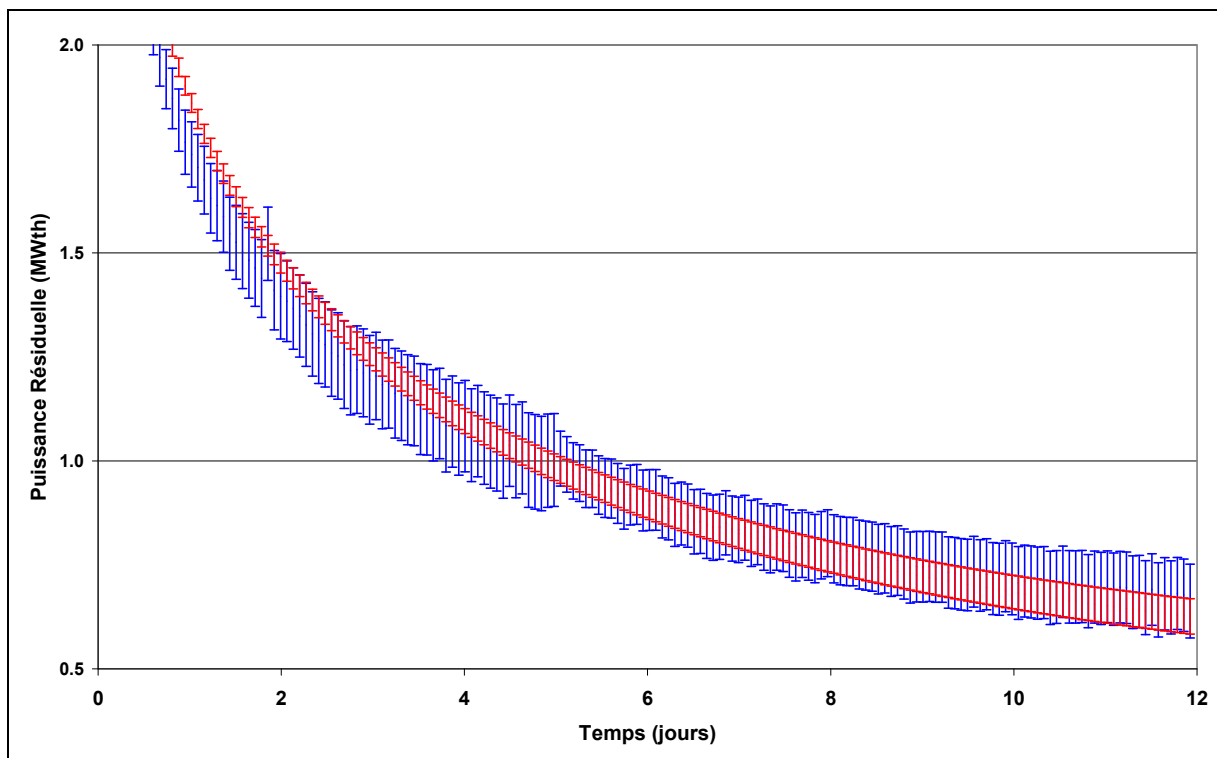
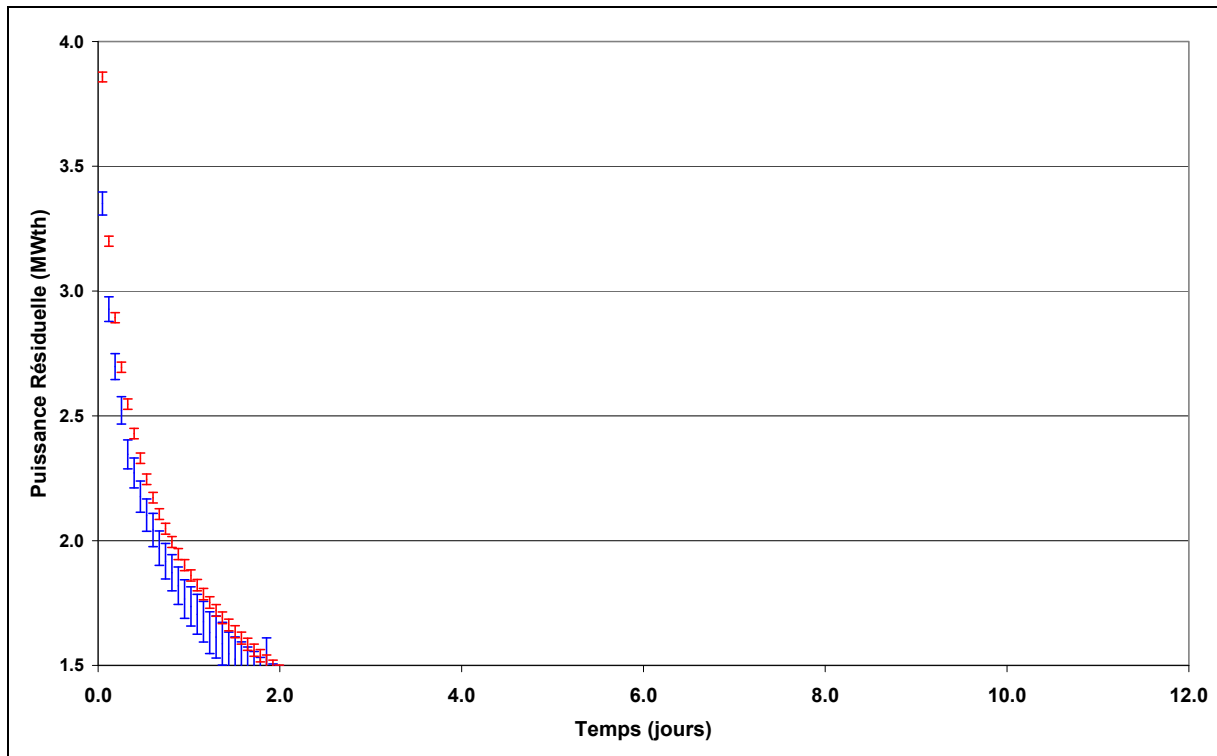


Fig. IV.6 (haut) et Fig. IV.7 (bas) : Détail de la comparaison entre les puissances résiduelles expérimentales et numériques pendant les deux premiers jours (haut) – respectivement dix derniers jours (bas) – de refroidissement pour l'essai PUIREX. (bleu : expérimentale, rouge : calcul).

## C – Conclusion sur l'interprétation de l'essai PUIREX

En conclusion, cet essai de puissance résiduelle peut être ajouté au dossier de validation expérimentale de la puissance résiduelle du code DARWIN associé à la bibliothèque JEFF3.1.1. Les écarts calcul/mesure sont faibles (compris entre – 8 % et + 8 %) et recouverts par les barres d'incertitudes à 1 sigma, ou, le cas échéant, le calcul surestime la puissance résiduelle expérimentale ce qui va dans le sens de la sûreté.

Malgré l'écart, non recouvert par les barres d'incertitude, pour les temps de refroidissement inférieurs à 2 jours, les résultats ne remettent pas en cause la modélisation de l'essai ou les valeurs des données nucléaires de la bibliothèque JEFF3.1.1. Cette modélisation peut donc être réutilisée pour tester les futures bibliothèques de données nucléaires et les futurs formulaires d'évolution.

L'analyse de l'incertitude de calcul de la puissance résiduelle de cet essai montre que celle-ci provient des rendements de fission des produits de fission, de la décroissance des noyaux d' $^{239}\text{U}$  et de  $^{239}\text{Np}$  des assemblages fissiles et fertiles du cœur, mais aussi des larges incertitudes associées à la puissance résiduelle libérée par les structures en acier du réacteur.

## II – Evaluation de l'incertitude du bilan matière dans l'essai TRAPU

L'expérience TRAPU a été réalisée dans le but de valider expérimentalement le bilan matière des noyaux lourds des codes de calcul d'évolution. La comparaison des bilans matière calculé et mesuré doit permettre de connaître la confiance qu'il est possible d'accorder à ces calculs, mais aussi de proposer des corrections de données nucléaires.

Pour cela, la concentration des noyaux suivants est comparée :  $^{234,235,236,238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ ,  $^{241,242\text{m},243}\text{Am}$ ,  $^{242,243,244,245}\text{Cm}$ . En plus de ces noyaux, les concentrations des isotopes du néodyme sont comparées. En effet, ces noyaux sont stables et ont des sections de capture neutroniques très faibles ce qui en fait de très bons témoins de la combustion massique des assemblages. La combustion massique du calcul provient du calcul du flux par un code de neutronique et de l'historique d'irradiation (afin de connaître le nombre de jours d'irradiation). Cependant, ces données peuvent être entachées d'erreurs et il peut apparaître un écart important entre la combustion massique du calcul et celle de l'expérience. La comparaison de la concentration des isotopes du néodyme permet de recalibrer le niveau de flux du calcul afin d'avoir la même combustion massique entre le calcul et l'expérience avant de comparer les concentrations des noyaux lourds.

Outre l'intérêt d'utiliser le code CYRUS dans ses champs d'application, l'analyse de cette expérience est particulièrement intéressante pour les deux points suivants.

Premièrement, cette expérience a déjà fait l'objet de plusieurs études [2][3][4] dont une très poussée sur les questions de correction de flux [5]. La modélisation de cette expérience pour le calcul des incertitudes rend possible la réévaluation des conclusions des études précédentes.

Deuxièmement, les conditions d'irradiation et la composition des assemblages sont suffisamment proches de celles de l'expérience PUIREX pour espérer pouvoir en tirer profit. En effet, la ventilation du plutonium et l'enrichissement d'un assemblage placé en cœur interne par rapport à l'un des crayons TRAPU sont semblables d'après le **tableau IV.3**. L'assemblage TRAPU a été irradié pendant 440 jours soit 364,5 JEPP ce qui est similaire aux

assemblages en cœur interne de PUIREX, avec cependant un flux neutronique compris entre  $3,0.10^{15}$  et  $7,5.10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/s ce qui est plus intense que PUIREX.

Ventilation Pu	C1 PHENIX	TRAPU1
<sup>238</sup> Pu	0.25%	0.12%
<sup>239</sup> Pu	70.34%	73.26%
<sup>240</sup> Pu	25.57%	21.92%
<sup>241</sup> Pu	2.88%	3.99%
<sup>242</sup> Pu	0.96%	0.71%
<b>PuO<sub>2</sub>/(U,Pu)O<sub>2</sub> (% en masse)</b>	<b>17.40</b>	<b>19.60</b>

Tab. IV.3 : Ventilation du plutonium dans les assemblages fissiles de PHENIX et dans le crayon placé dans l'assemblage expérimental TRAPU1.

## A – Modélisation des jeux de données pour le calcul numérique

### 1) Historique d'irradiation

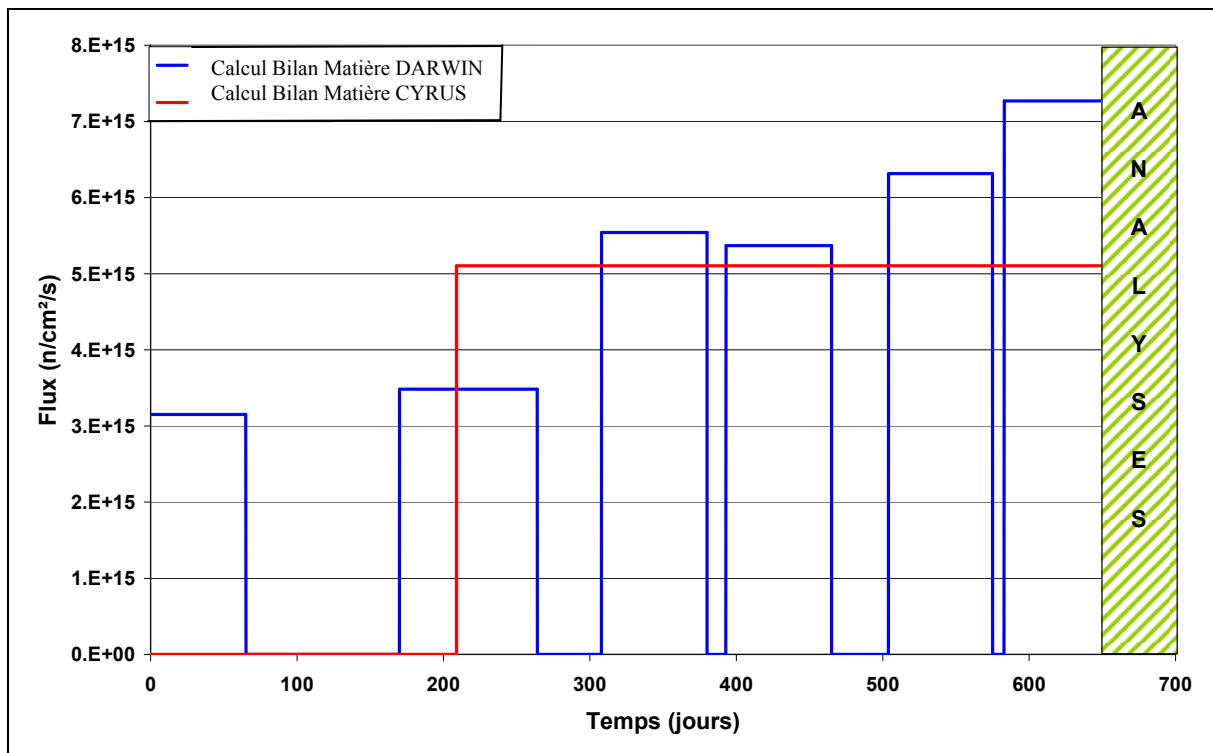


Fig. IV.8 : Modélisation de l'historique d'irradiation pour les calculs du bilan matière (DARWIN) et de son incertitude (CYRUS).



L'historique d'irradiation a été modélisé de deux façons différentes pour le calcul du bilan matière réalisé avec DARWIN et pour le calcul d'incertitude avec CYRUS (voir **figure IV.8**). L'historique d'irradiation pour le calcul du bilan matière avec DARWIN suit scrupuleusement l'historique d'irradiation de la centrale PHENIX. Celui du code CYRUS a été simplifié en un seul palier d'irradiation dont le niveau de flux a été calculé de façon à conserver le taux de combustion.

a) Impact de l'historique d'irradiation simplifié sur le calcul de la concentration des noyaux

Cette simplification a un impact négligeable sur la plupart des noyaux, mais malheureusement pas sur tous. Le **tableau IV.4** présente l'écart obtenu sur les concentrations des noyaux à la fin de l'irradiation pour un calcul réalisé avec le code DARWIN et dont l'historique d'irradiation est simplifié ou détaillé. Les  $^{241,242\text{m}}\text{Am}$  et  $^{242,243}\text{Cm}$  ont des écarts non négligeables provenant de la partie du  $^{241}\text{Pu}$  qui n'a pu décroître dans le calcul avec l'historique d'irradiation simplifié. Les  $^{234}\text{U}$  et  $^{238}\text{Pu}$  sont d'ailleurs directement impactés par l'écart obtenu sur le  $^{242}\text{Cm}$ .

Noyaux	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{237}\text{Np}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
Ecart (%)	-2.18	0.04	-0.55	0.00	0.76	-3.82	0.31	0.03	1.60	0.29

Noyaux	$^{241}\text{Am}$	$^{242\text{m}}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$	$^{242}\text{Cm}$	$^{243}\text{Cm}$	$^{244}\text{Cm}$	$^{245}\text{Cm}$
Ecart (%)	-14.50	-17.30	-0.41	-19.44	-7.08	-0.75	-0.50

Noyaux	$^{143}\text{Nd}$	$^{144}\text{Nd}$	$^{145}\text{Nd}$	$^{146}\text{Nd}$	$^{148}\text{Nd}$	$^{150}\text{Nd}$
Ecart (%)	2.65	0.20	-0.24	0.09	0.20	0.18

Tab. IV.4 : Ecart de concentration des noyaux entre un calcul DARWIN avec un historique d'irradiation simplifié et un calcul DARWIN avec un historique d'irradiation détaillé (voir **figure IV.8**).

Cependant, le module INVERSION du code DARWIN précise que la création des  $^{241,242}\text{Am}$  et des  $^{242,243}\text{Cm}$  se fait par une seule et même voie de formation décrite dans la **figure IV.9**. Puisqu'il n'y a pas de compétition entre plusieurs voies de formation, les sensibilités des concentrations des noyaux aux données nucléaires devraient être les mêmes.

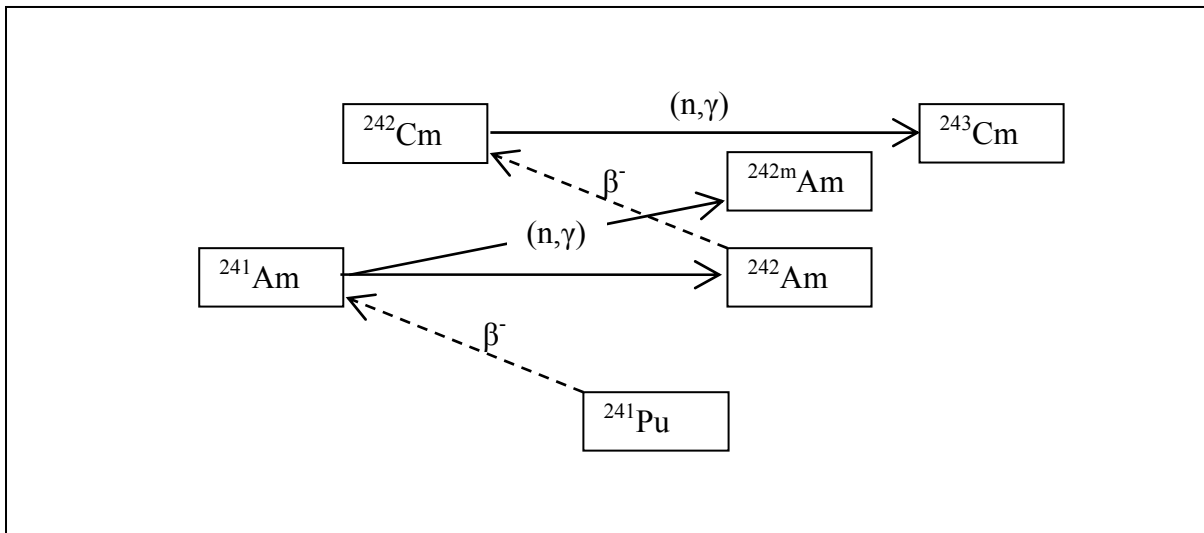


Fig. IV.9 : Voie de formation ultra-majoritaire de la formation des noyaux possédant les écarts les plus importants sur la concentration.

b) Impact d'une non prise en compte du temps de refroidissement après irradiation

Une autre hypothèse a été réalisée concernant la date d'analyse des assemblages de TRAPU. Les analyses chimiques des différents échantillons ont été effectuées à différentes dates et ramenées à une unique date : 140 jours après la fin de l'irradiation. Ce temps de refroidissement est pris en compte dans l'établissement du bilan matière par le code DARWIN. Par contre, il n'est pas respecté dans l'établissement des incertitudes par le code CYRUS, celles-ci étant établies en fin d'irradiation. Cette hypothèse est purement pratique puisque le développement du code à cette date ne permet d'obtenir la valeur des contributions des paramètres à l'incertitude sur la concentration des noyaux qu'à la fin de l'irradiation. Cependant, les noyaux ont des durées de vie bien trop longues pour que cette hypothèse ait le moindre impact.

En effet, l'incertitude en refroidissement dépend de deux paramètres : la concentration en fin d'irradiation et la période du noyau. Or d'après le chapitre 5, la sensibilité d'un noyau à sa période varie linéairement avec le temps avec une pente égale à l'inverse de la période. La sensibilité du noyau à sa période est donc beaucoup trop faible pour que ce paramètre ait un impact sur l'incertitude de la concentration du noyau après 140 jours de refroidissement. Le seul noyau pouvant être légèrement impacté est le  $^{242}\text{Cm}$  qui a une période de 165 jours. Cependant aucun changement n'a été observé sur ce noyau.

## 2) Modélisation des chaînes d'évolution pour l'expérience TRAPU

Concernant les noyaux lourds, les chaînes de réaction développées pour la propagation des incertitudes des assemblages fissiles de PUIREX sont transposables pour traiter l'expérience TRAPU.

Concernant les produits de fission, il n'est pas nécessaire d'utiliser toutes les chaînes développées pour l'étude de l'essai PUIREX car elles contiennent beaucoup trop de noyaux superflus pour l'expérience TRAPU. De plus, il est possible dans ce cas d'utiliser les rendements de fission cumulés qui sont connus avec beaucoup plus de précision que les rendements de fission indépendants. En effet, les parents des néodymes sont saturés très rapidement au cours de l'irradiation ce qui rend le terme source des néodymes constant.

Les  $^{145,146,148,150}\text{Nd}$  sont considérés comme les têtes de chaîne et leurs rendements cumulés de fission sont directement modélisés. Le  $^{144}\text{Nd}$  a un grand-père qui a une période de 265 jours : le  $^{144}\text{Ce}$ . C'est donc le  $^{144}\text{Ce}$  qui est tête de chaîne et a son rendement cumulé de fission qui est modélisé. Les  $^{144,144\text{m}}\text{Pr}$  sont les parents du  $^{144}\text{Nd}$  et sont eux aussi modélisés bien qu'ayant une durée de vie plus courte car ils permettent de modéliser la formation du  $^{144}\text{Nd}$  par la section de capture du  $^{143}\text{Pr}$ . Puisque la modélisation de cette réaction est nécessaire, c'est le rendement de fission cumulé du  $^{143}\text{Pr}$  qui est modélisé pour la chaîne de masse  $A = 143$ .

Il est important de modéliser le  $^{144}\text{Ce}$  pour une autre raison. Il n'était expérimentalement pas possible lors de l'expérience TRAPU de mesurer le rapport de concentration du  $^{144}\text{Nd}$  sans mesurer en même temps la concentration du  $^{144}\text{Ce}$ . L'incertitude totale associée au rapport du  $^{144}\text{Nd}$  doit prendre en compte l'incertitude des deux concentrations.

## 3) Source des données d'incertitude

Les incertitudes utilisées pour la propagation des incertitudes proviennent de la bibliothèque JEFF3.1.1 pour ce qui concerne les rendements de fission des néodymes et les données de décroissance des produits de fission et des noyaux lourds. Les incertitudes sur les sections efficaces des noyaux lourds sont les mêmes que celles de PUIREX, elles proviennent de

COMMARA-2.0. Les incertitudes des sections efficaces de capture des produits de fission ont été portées à 10 % par manque d'information.

## **B – Résultats de l'expérience TRAPU**

### **1) Description des données mesurées**

Deux sortes de noyaux ont fait l'objet de mesures : des noyaux lourds et des isotopes du néodyme.

Les isotopes du néodyme sont de très bons indicateurs du taux de combustion car ils sont stables ou à durée de vie très longue, peu capturant, et leurs rendements de fission cumulés sont très précis. L'analyse de l'écart calcul-mesure de ces noyaux permet de corriger la valeur du flux neutronique de manière à conserver le bon taux de combustion.

La mesure de la concentration des noyaux lourds est le but de l'expérience TRAPU. L'analyse de l'écart entre le calcul et la mesure va déterminer la validité du formulaire DARWIN et plus particulièrement la qualité des données nucléaires de la bibliothèque JEFF3.1.1.

Les résultats de l'expérience sont donnés sous la forme de rapports entre noyaux. Ces rapports ont été combinés de façon à obtenir un dénominateur commun :  $1^{238}\text{U}$ . Celui-ci a été choisi car la valeur de sa concentration est la plus stable durant le temps d'irradiation et en conséquence la plus précise.

Les incertitudes expérimentales proviennent de la double dissolution de l'échantillon (afin d'isoler les noyaux à mesurer), de la spectrométrie de masse et de la spectrométrie alpha.

### **2) Analyse des résultats de l'expérience**

Les figures suivantes présentent l'écart entre le calcul et la mesure pour les différents noyaux. Afin de compléter l'analyse des écarts, les barres d'incertitude expérimentales et de calcul ont été ajoutées de la façon suivante : la barre d'incertitude de calcul est portée à l'endroit de l'écart et celle des mesures est portée sur l'axe des abscisses (car les mesures font office de

référence pour le calcul). Ceci permet de voir s'il y a un recoupement entre les barres d'incertitude.

Les barres d'incertitude représentent un domaine de  $\pm 1$  sigma en supposant les lois de distribution comme étant des gaussiennes.

#### a) Evaluation du biais du taux de combustion

L'analyse des isotopes du néodyme est censée fournir le biais de modélisation sur le taux de combustion. Le  $^{148}\text{Nd}$  est l'isotope principal de recalage. La **figure IV.10** présente les écarts. Les incertitudes de calcul proviennent uniquement des données nucléaires.

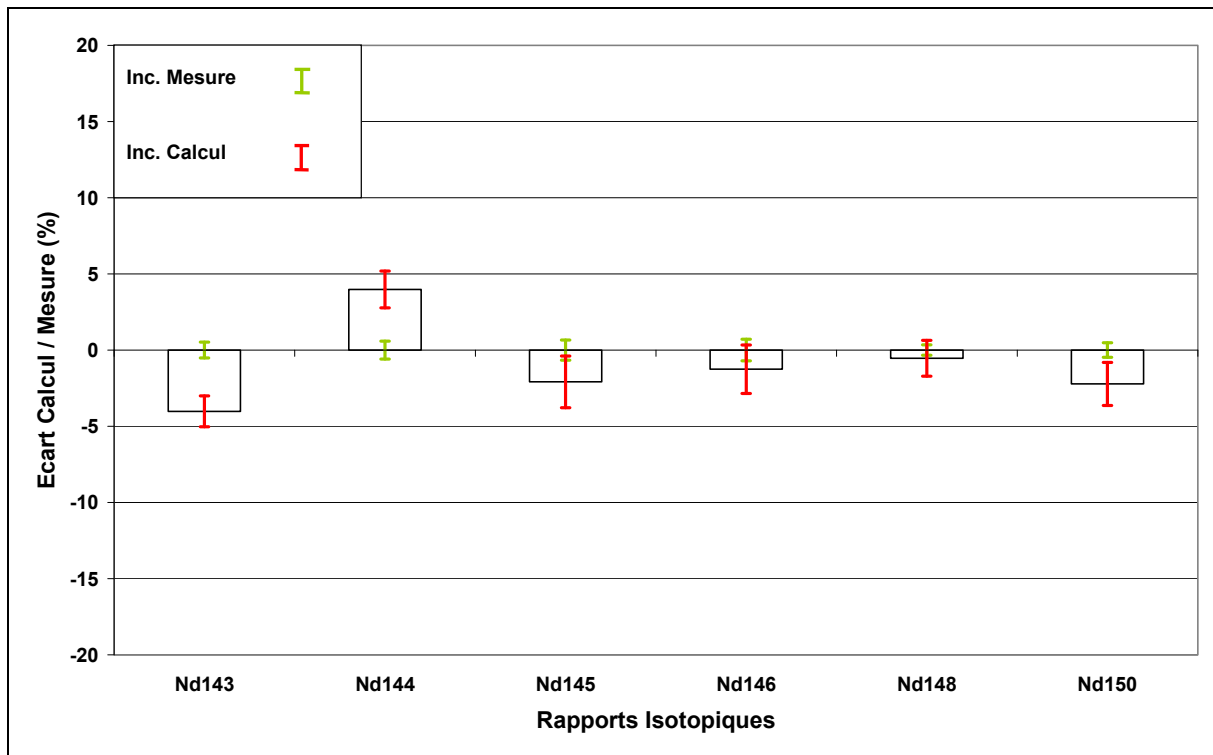


Fig. IV.10 : Ecart calcul-mesure sur les isotopes du néodyme de l'expérience TRAPU.

Les  $^{146,148}\text{Nd}$  sont bien calculés puisque l'écart est faible et les barres d'incertitudes de calcul et de mesure se recoupent largement. Les barres d'incertitudes du  $^{145}\text{Nd}$  (très faible recouvrement) et du  $^{150}\text{Nd}$  (très faible écart) ne permettent pas d'expliquer l'écart entre le calcul et la mesure. Par contre, les écarts entre le calcul et la mesure sont larges sur les  $^{143,144}\text{Nd}$  et les barres d'incertitude ne se recoupent pas du tout.

Des constatations précédentes, il est possible de conclure qu'il ne semble pas nécessaire de corriger la fluence. Si les écarts suggèrent une légère sous-estimation, le recoupement des barres d'incertitudes suffit à expliquer ceux-ci par une trop faible précision de l'expérience et des données nucléaires. De plus, le  $^{148}\text{Nd}$  est l'isotope du néodyme le plus régulièrement utilisé et reconnu comme le meilleur indicateur de la fluence, or l'écart calcul/expérience de ce noyau est très faible.

Par contre, il est possible d'ajouter une incertitude au taux de combustion ce qui aura un intérêt pour le calcul des incertitudes des noyaux lourds. Cette incertitude est évaluée sur le  $^{148}\text{Nd}$  pour les raisons évoquées ci-dessus. La barre d'incertitude due aux données nucléaires recouvrant l'écart calcul/expérience ainsi que la barre d'incertitude de l'expérience, c'est cette valeur de l'incertitude (2 %) qui sera choisie pour le taux de combustion.

#### b) Evaluation des données nucléaires des noyaux lourds

Le résultat des écarts entre le calcul et la mesure ainsi que les barres d'incertitudes de calcul et expérimentales sont présentés sur la **figure IV.11** pour les noyaux lourds.

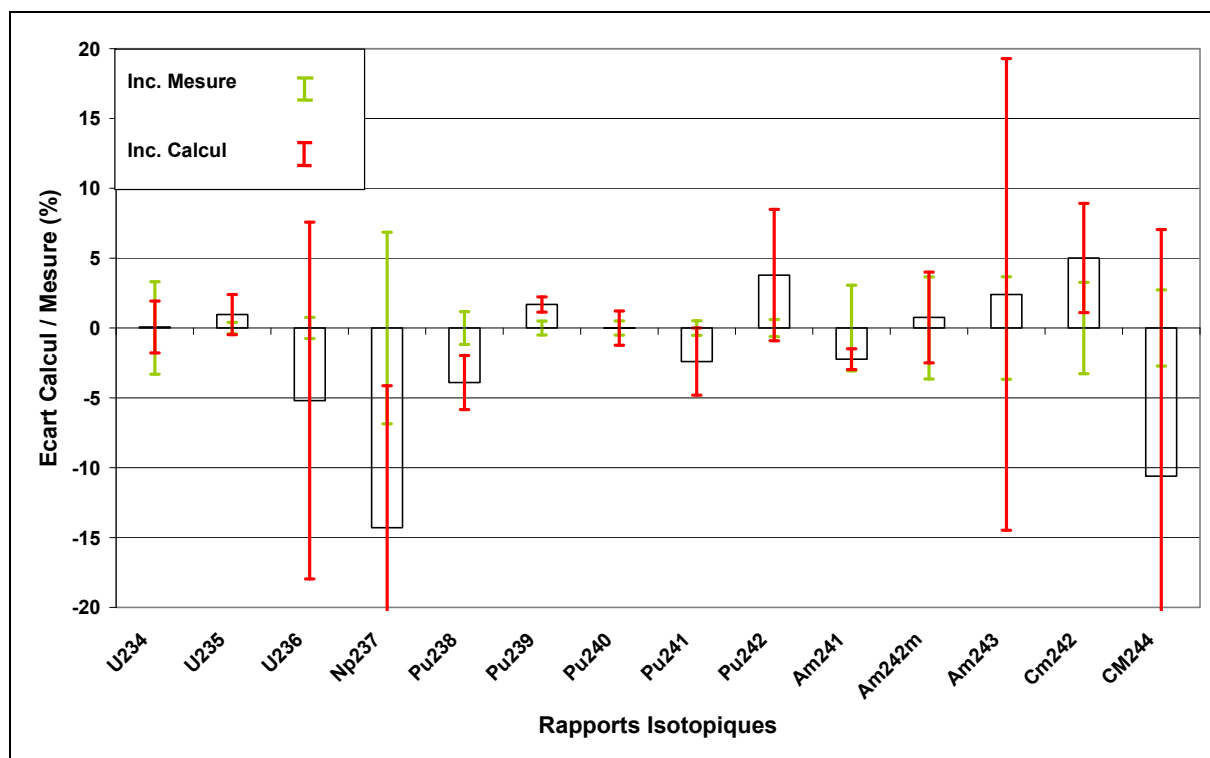


Fig. IV.11 : Ecart calcul-mesure sur les noyaux lourds de l'expérience TRAPU.

## PARTIE IV

Les écarts des  $^{234,235}\text{U}$  sont faibles et les barres d'erreur se recoupent très largement. L'écart est important sur  $^{236}\text{U}$ , mais les incertitudes de calcul ne nous permettent pas de conclure. Cette incertitude est due à la section de capture de  $^{235}\text{U}$  qui est mal connue en spectre rapide (14 % d'incertitude).

Le  $^{237}\text{Np}$  présente un très grand écart avec de larges barres d'erreurs. Plus de 98 % de la barre d'incertitude de calcul provient de la section de capture (n,2n) de  $^{238}\text{U}$  dont l'incertitude est de 11 %.

Les isotopes du plutonium présentent des écarts assez faibles. Cependant, les incertitudes de leurs données nucléaires sont suffisamment faibles pour laisser apparaître des écarts non recouverts par les barres d'erreur pour les  $^{238,239}\text{Pu}$ . Dans ce cas, il est intéressant d'analyser les sensibilités de ces noyaux aux données nucléaires. Le **tableau IV.5** et le **tableau IV.6** présentent ces valeurs pour les contributions majoritaires.

Données nucléaires	Incertitude de la donnée nucléaire (%)	Sensibilité Relative
$\sigma^{n,\gamma}(^{241}\text{Am})$	1,87	0,25
$\sigma^f(^{238}\text{Pu})$	2,02	-0,18
$T_{1/2}(^{242}\text{Cm})$	0,04	-0,15
$\sigma^{n,2n}(^{238}\text{U})$	11,03	0,10
$\sigma^{n,\gamma}(^{237}\text{Np})$	4,30	0,09
$\sigma^{n,\gamma}(^{238}\text{Pu})$	14,07	-0,07
$T_{1/2}(^{241}\text{Pu})$	0,28	-0,06
$\sigma^{n,2n}(^{239}\text{Pu})$	18,71	0,04

Tab. IV.5 : Sensibilités relatives de la concentration du  $^{238}\text{Pu}$  aux données nucléaires.

Données nucléaires	Incertitude de la donnée nucléaire (%)	Sensibilité Relative
$\sigma^f(^{239}\text{Pu})$	0,40	-0,30
$\sigma^{n,\gamma}(^{238}\text{U})$	1,38	0,25
$\sigma^{n,\gamma}(^{239}\text{Pu})$	5,04	-0,08

Tab. IV.6 : Sensibilités relatives de la concentration du  $^{239}\text{Pu}$  aux données nucléaires.

D'après le **tableau IV.5**, les données nucléaires les plus influentes sur la concentration du  $^{238}\text{Pu}$  sont la section de capture radiative de l' $^{241}\text{Am}$  (qui produit de l' $^{242}\text{Am}$  qui décroît sur le  $^{242}\text{Cm}$  qui décroît lui-même sur le  $^{238}\text{Pu}$ ), la période du  $^{242}\text{Cm}$ , la section efficace de fission du  $^{238}\text{Pu}$  et la section de capture (n,2n) de l' $^{238}\text{U}$  (qui produit de l' $^{237}\text{U}$  qui décroît vers le  $^{237}\text{Np}$  (très mal connu d'après la **figure IV.11**) qui produit du  $^{238}\text{Np}$  par capture radiative, et qui décroît vers le  $^{238}\text{Pu}$ ). L'incertitude de la période du  $^{242}\text{Cm}$  ne semble pas à remettre en cause car elle est facile à mesurer. Par contre, les incertitudes sur les sections efficaces de l' $^{241}\text{Am}$  et du  $^{238}\text{Pu}$  sont très faibles et peut-être sous-estimées. En particulier, il faudrait pouvoir apprécier l'impact du calcul ERANOS sur l'incertitude de ces sections lors du calcul neutronique. Une autre piste est la sous-production de  $^{238}\text{Pu}$  par la voie du  $^{237}\text{Np}$ . La sensibilité de la concentration du  $^{238}\text{Pu}$  aux sections efficaces de l' $^{238}\text{U}$  et du  $^{237}\text{Np}$  n'étant pas négligeable, la réduction de l'écart calcul/expérience du  $^{238}\text{Pu}$  passe par une amélioration de l'écart calcul/expérience du  $^{237}\text{Np}$ .

D'après le **tableau IV.6**, les deux paramètres impactant fortement l'évolution de la concentration du  $^{239}\text{Pu}$  sont : la section de fission du  $^{239}\text{Pu}$  et la section de capture radiative de l' $^{238}\text{U}$  (qui produit du  $^{239}\text{Pu}$  par décroissance successive de l' $^{239}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Np}$ ). La même remarque s'applique que pour le  $^{238}\text{Pu}$  : il faudrait pouvoir évaluer l'impact du calcul ERANOS sur l'incertitude de ces sections, car leur incertitude est extrêmement faible.

Les  $^{241,242}\text{Pu}$  ont des incertitudes pour lesquelles la barre d'erreur de calcul recouvre juste l'écart et la barre d'erreur de mesure. Ces incertitudes sont dues aux sections de capture radiative du  $^{240,241}\text{Pu}$  (81,4 % et 16 %) pour le  $^{241}\text{Pu}$ , et celles du  $^{241,242}\text{Pu}$  (92 % et 7 %) pour le  $^{242}\text{Pu}$ . Sachant que les incertitudes de ces paramètres sont respectivement de 5,37 %, 14,39 %, 17,48 %, le travail devrait être orienté sur l'amélioration de la précision de la capture radiative du  $^{241}\text{Pu}$ .

Les isotopes de l'américium présentent des écarts assez faibles et complètement recouverts par les barres d'incertitudes. C'est particulièrement flagrant sur les  $^{242\text{m},243}\text{Am}$  pour lesquels les incertitudes de calcul sont très larges. Le **tableau IV.7** et le **tableau IV.8** présentent les pourcentages de contribution des données nucléaires à l'incertitude de la concentration de ces noyaux. L' $^{242\text{m}}\text{Am}$  gagnerait d'une section de fission et de capture inélastiques plus précises. L' $^{243}\text{Am}$ , formé par la décroissance du  $^{243}\text{Pu}$ , verrait la précision de sa concentration améliorée par une amélioration de la section de capture radiative du  $^{242}\text{Pu}$ .



Données nucléaires	Incertitude de la donnée nucléaire (%)	Contribution à l'incertitude (%)
$\sigma^f(^{242m}\text{Am})$	9,55	52,19
$\sigma^{n,\gamma}(^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242m}\text{Am})$	1,87	31,79
$\sigma^{n,n'}(^{242m}\text{Am})$	27,82	14,67

Tab. IV.7 : Contributions des données nucléaires à l'incertitude de la concentration de l' $^{242m}\text{Am}$ .

Données nucléaires	Incertitude de la donnée nucléaire (%)	Contribution à l'incertitude (%)
$\sigma^{n,\gamma}(^{242}\text{Pu})$	17,48	97,08
$\sigma^{n,\gamma}(^{241}\text{Pu})$	14,39	2,76

Tab. IV.8 : Contributions des données nucléaires à l'incertitude de la concentration de l' $^{243}\text{Am}$ .

L' $^{241}\text{Am}$  semble légèrement sous-estimé. Il provient du  $^{241}\text{Pu}$  qui est lui-même légèrement sous-estimé.

Les isotopes du curium et notamment les  $^{242,244}\text{Cm}$  sont importants pour les calculs de la puissance résiduelle aux temps courts. De plus, il a été vu précédemment que les données contribuant à la concentration du  $^{242}\text{Cm}$  impactent fortement les  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{234}\text{U}$ . L'incertitude de calcul du  $^{244}\text{Cm}$  est très grande. Elle est encore une fois due à la section de capture radiative du  $^{242}\text{Pu}$  d'après le **tableau IV.9**.

Données nucléaires	Incertitude de la donnée nucléaire (%)	Contribution à l'incertitude (%)
$\sigma^{n,\gamma}(^{242}\text{Pu})$	17,48	91,54
$\sigma^{n,\gamma}(^{243}\text{Am} \rightarrow ^{244m}\text{Am})$	5,05	5,84

Tab. IV.9 : Contributions des données nucléaires à l'incertitude de la concentration du  $^{244}\text{Cm}$ .

Les incertitudes de calcul et expérimentale du  $^{242}\text{Cm}$  sont grandes et se recouvrent légèrement. On peut en déduire une légère surestimation de la concentration de ce noyau induisant une surestimation de la puissance résiduelle aux temps courts. Néanmoins, la concentration du noyau gagnerait en précision si les incertitudes sur les sections de capture et de fission du  $^{242}\text{Cm}$  étaient améliorées (voir **tableau IV.10**).

Données nucléaires	Incertitude de la donnée nucléaire (%)	Contribution à l'incertitude (%)
$\sigma^f(^{242}\text{Cm})$	79,14	67.41
$\sigma^{n,\gamma}(^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Am})$	1,87	16.35
$\sigma^{n,\gamma}(^{242}\text{Cm})$	55,07	15.41

Tab. IV.10 : Contributions des données nucléaires à l'incertitude de la concentration du  $^{242}\text{Cm}$ .

## C – Conclusion sur l'interprétation de l'essai TRAPU

En conclusion, les noyaux importants pour la contribution au nombre de fission sont bien calculés. Les écarts et les barres d'erreur de ces noyaux ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) sont faibles. Il n'est pas possible de conclure sur les écarts calcul-mesure des noyaux plus lourds que le  $^{242}\text{Pu}$  car les incertitudes de calcul sont trop fortes. Cependant, ces incertitudes proviennent des mêmes données nucléaires. Il semble donc qu'il faille améliorer les sections efficaces de réaction suivantes : les sections de capture radiative des  $^{241,242}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ , les sections de fission des  $^{242\text{m}}\text{Am}$  et  $^{242}\text{Cm}$ , et la section de capture (n,2n) de l' $^{238}\text{U}$ . De plus, une étude sur l'incertitude de certaines sections efficaces et sur l'impact d'un calcul ERANOS sur leur incertitude semble nécessaire car l'évaluation actuelle de ces incertitudes semble particulièrement faible.

### III – Analyse de la puissance résiduelle produite par une fission thermique de l' $^{235}\text{U}$

Les premiers combustibles de réacteurs ont été réalisés à base d' $^{235}\text{U}$ . En conséquence, de nombreuses mesures ont été réalisées sur la puissance résiduelle libérée par la fission de l' $^{235}\text{U}$  par un neutron thermique comme évoqué dans la bibliographie. Ces expériences sont très intéressantes car elles permettent les mesures les plus précises de la puissance résiduelle. Elles sont d'ailleurs à la base des standards de l'American Nuclear Society (ANS) et de l'American National Standards Institut (ANSI) sur la puissance résiduelle [6], eux-mêmes utilisés par la Nuclear Regulatory Commission (NRC, équivalent de l'Autorité de Sureté Nucléaire aux Etats-Unis).

Outre l'aspect sûreté des centrales, du transport et du stockage, ces mesures sont aussi utilisées pour valider expérimentalement les bibliothèques de données nucléaires. En effet, la modélisation de la variation de la concentration des noyaux par les équations d'évolution semble représenter très convenablement le phénomène physique. De plus, les calculs numériques sont de nos jours très précis. Ainsi, il est généralement admis que la modélisation de la puissance résiduelle ne génère pas d'incertitude provenant du code de calcul. En conséquence, si écart entre le calcul et la mesure il y a, celui-ci provient des données nucléaires de la bibliothèque, des hypothèses de modélisation du calcul ou de l'expérience elle-même. Ces expériences ont en particulier permis de mettre à jour le problème de l'évaluation des énergies de décroissance bêta et gamma de certains noyaux. Celui-ci est appelé le « pandemonium problem » [7].

L'étude ci-dessous va se placer dans ce cas. Le but est de comparer le résultat du calcul de la puissance résiduelle aux expériences de référence [8][9][10][11] en y associant, comme il a été réalisé pour l'expérience TRAPU dans le paragraphe II de cette partie, l'évaluation de l'incertitude du calcul due aux données nucléaires.

De plus, une analyse des incertitudes et une liste des données nucléaires ayant le plus d'impact sur ces incertitudes sont réalisées.

Dans le cas d'un écart non explicable par les barres d'incertitude, il peut être déduit un probable biais dans certaines données de la bibliothèque de données nucléaires ou bien suspecter une sous-estimation des incertitudes associées aux données nucléaires.

## A – Description des données du calcul

Le calcul de la puissance résiduelle est réalisé par le code DARWIN. Une option du code permet de donner comme composition initiale des produits de fission, leurs rendements indépendants de fission thermique provenant de l' $^{235}\text{U}$ . Le code calcule ensuite les concentrations des produits de fission pendant la décroissance.

Les deux chaînes de produits de fission du code CYRUS, développées pour l'analyse de l'expérience PUIREX, ont été utilisées pour le calcul de l'incertitude des concentrations. Les produits de fission manquants ont une incertitude évaluée directement à 10 %. Les données de composition initiale des produits de fission sont les rendements indépendants de fission thermique provenant de l' $^{235}\text{U}$  avec leurs incertitudes.

Les données perturbées dans le code CYRUS sont les rendements indépendants de fission, les périodes, les énergies et les rapports de branchement. Toutes ces données proviennent de la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.1.1.

## B – Comparaison des résultats du calcul de puissance résiduelle avec les mesures

La **figure IV.12** présente les valeurs des mesures reconnues comme les meilleures de la courbe de fission élémentaire (CFE) de l' $^{235}\text{U}(\text{th})$ . De plus, elle présente les valeurs de la CFE calculée avec ses enveloppes d'incertitudes à un sigma et trois sigmas.

Les mesures de NGUYEN et de DICKENS sont cohérentes pendant les 100 premières secondes. Elles sont cohérentes avec celles de JOHANSSON et de LOTT entre 100 secondes et 2000 secondes. Les deux derniers points semblent faux (ce qui n'est pas anormal puisque cette expérience avait pour but d'étudier les temps de refroidissement très courts). Les mesures de JOHANSSON sont toujours bien supérieures aux autres mesures des autres

expériences sauf autour de 100 secondes. Les deux premiers points de mesures de LOTT (autour de 100 secondes) semblent sous-estimer la puissance résiduelle (même argument que pour les deux derniers points de NGUYEN). Ils sont ensuite cohérents avec les mesures de JOHANSSON et NGUYEN autour de 1 000 secondes puis avec ceux de DICKENS autour de 10 000 secondes. D'après ces différentes mesures, il semble pertinent de conserver comme référence les mesures de NGUYEN et celles de DICKENS pour les temps de refroidissement inférieurs à 200 secondes, puis les mesures de LOTT, JOHANSSON et NGUYEN autour de 1 000 secondes, puis les valeurs de LOTT pour les temps plus longs.

L'accord entre la mesure et le calcul est satisfaisant, même si certains écarts peuvent être mis en avant. Le calcul modélise bien les mesures de DICKENS pour tous les temps de refroidissement. En conséquence, il sous-estime la puissance résiduelle mesurée par les expériences de LOTT, JOHANSSON et NGUYEN pour les temps de refroidissement autour de 1 000 secondes (ces points restent dans les barres d'incertitudes à 3 sigmas). A partir de 2 000 secondes, le calcul modélise parfaitement les points de mesure de LOTT.

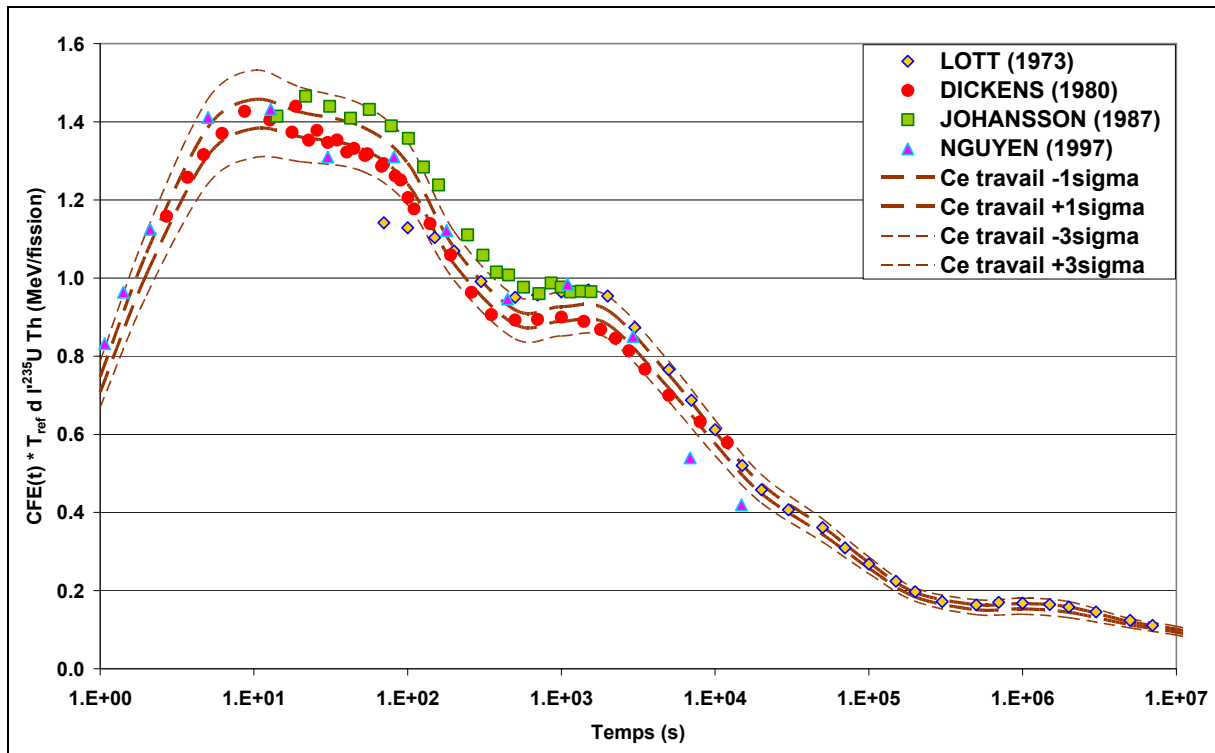


Fig. IV.12 : Comparaison des résultats de puissance résiduelle d'une fission élémentaire thermique de  $1^{235}\text{U}$  calculés avec DARWIN/JEFF3.1.1 et CYRUS par rapport aux mesures.

Finalement, un bon accord de la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.1.1 avec les mesures peut être conclu. Afin de faire apparaître des écarts (en particulier autour de 1 000 secondes), il faudrait de nouvelles valeurs de données nucléaires encore plus précises ce qui réduirait les barres d'incertitudes.

### C – Analyse de l'incertitude de calcul de la puissance résiduelle

La courbe de l'incertitude de la puissance résiduelle due à la fission thermique d'un noyau d' $^{235}\text{U}$  a été obtenue dans la partie III au chapitre 3. La **figure IV.13** y ajoute la répartition des contributions entre les rendements de fission, les périodes et les énergies.

Les rendements indépendants de fission sont les paramètres ayant la plus forte incertitude. Il est donc normal qu'ils aient l'impact le plus fort sur l'incertitude associée à la puissance résiduelle totale. Jusqu'à 1000 secondes, l'impact léger des énergies et des périodes reste quand même visible.

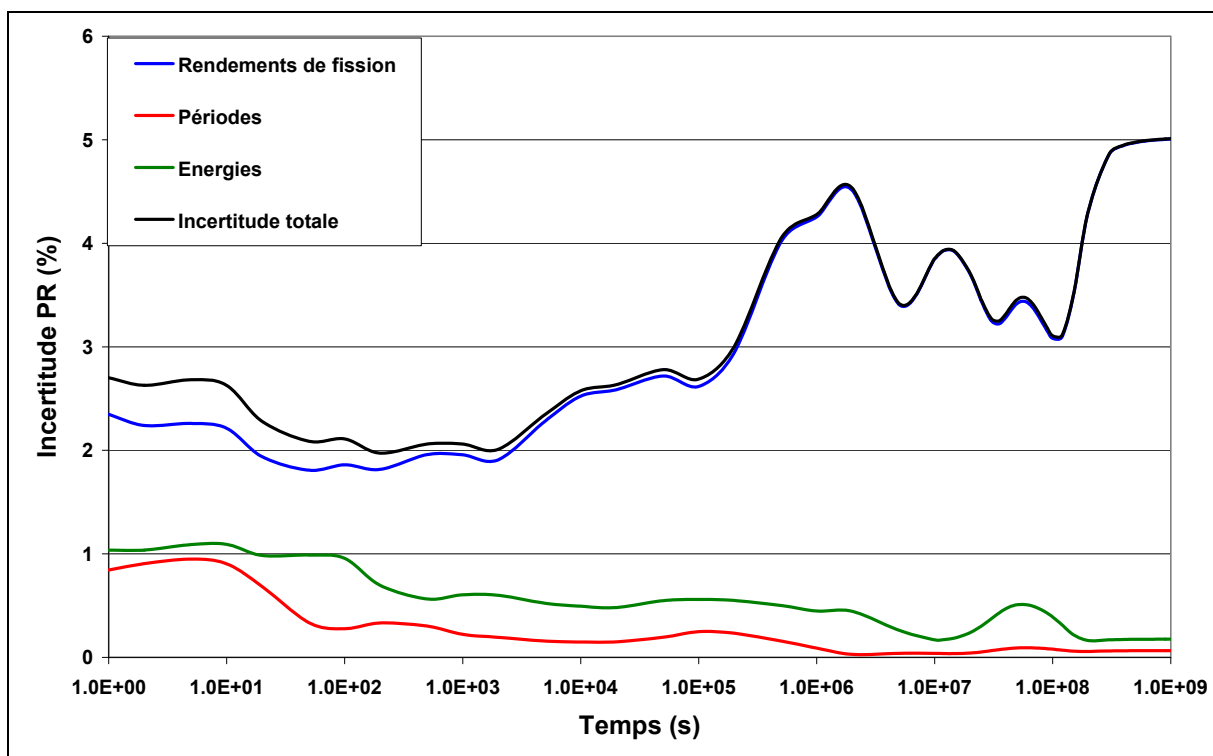


Fig. IV.13 : Incertitude de la puissance résiduelle pour une fission thermique d'un noyau d' $^{235}\text{U}$ .

Au chapitre susmentionné était déjà indiqué les structures clairement visibles dans la courbe de l'incertitude de la puissance résiduelle dont la suite de l'étude cherche à comprendre l'origine.

La **figure IV.14** présente le résultat de cette analyse pour des temps de refroidissement supérieurs à  $1.10^5$ s. Elle est obtenue avec le code CYRUS en calculant la contribution de chacun des noyaux à la variance de la puissance résiduelle puis en multipliant cette contribution à l'incertitude totale. Cela ne représente pas le gain en précision possible sur la puissance résiduelle, mais c'est une bonne représentation des paramètres principaux et de la valeur de leur contribution.

La double bosse autour de 11 jours ( $1.10^6$  s) de refroidissement est principalement due à deux noyaux : le  $^{140}\text{La}$  et l' $^{132}\text{I}$ . La bosse à 139 jours ( $1,2.10^7$  s) est due à trois noyaux : le  $^{95}\text{Nb}$ , le  $^{95}\text{Zr}$  et  $^{91}\text{Y}$ . Celle à 694 jours ( $6.10^7$  s) est due au seul  $^{144}\text{Pr}$ . Enfin le plateau visible au-delà de  $10^8$  secondes est dû aux  $^{90}\text{Y}$  et  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ .

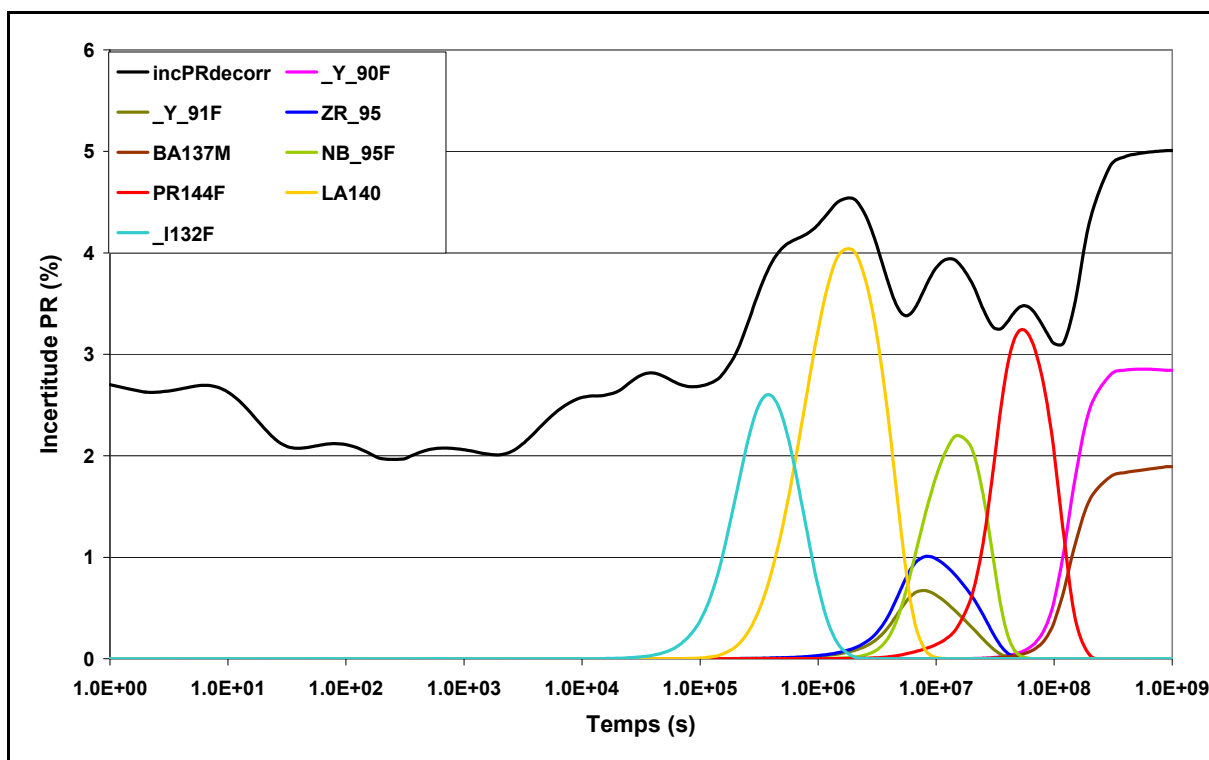


Fig. : Analyse des noyaux contribuant le plus à l'incertitude de la puissance résiduelle (cas de la fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$  en spectre thermique).

Ces noyaux peuvent ensuite être analysés afin de savoir quels sont les paramètres qui entraînent une telle incertitude. Le **tableau IV.11** présente pour chacun l'incertitude de la concentration, de la période et de l'énergie au temps de leur contribution maximale.

Temps de refroidissement (s)	Noyaux	Incertitude (%)		
		Concentration	Période	Energie
<b>5,0.10<sup>5</sup></b>	<b><sup>132</sup>I</b>	11.17	0.57	1.31
<b>2,0.10<sup>6</sup></b>	<b><sup>140</sup>La</b>	8.71	0.01	0.34
<b>1,0.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>95</sup>Zr</b>	9.54	0.01	0.35
<b>1,0.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>91</sup>Y</b>	12.10	0.10	0.22
<b>1,5.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>95</sup>Nb</b>	9.54	0.02	0.03
<b>5,5.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>144</sup>Pr</b>	4.93	0.12	0.74
<b>3,0.10<sup>8</sup></b>	<b><sup>137m</sup>Ba</b>	9.29	0.04	0.47
<b>3,0.10<sup>8</sup></b>	<b><sup>90</sup>Y</b>	7.95	0.13	0.13

Tab. IV.11 : Incertitudes des paramètres (concentration, période, énergie) des principaux contributeurs à l'incertitude de la puissance résiduelle. Ces noyaux contribuent le plus à l'incertitude de la puissance résiduelle aux temps de refroidissement indiqués.

De ce tableau, il ressort que le paramètre prépondérant est la concentration quel que soit le temps de refroidissement. La période et l'énergie ont des impacts très faibles ce qui est cohérent avec la **figure IV.13**.

De plus, CYRUS permet de connaître les paramètres contribuant à l'incertitude de cette concentration au temps de décroissance sélectionné. Ces contributions sont chiffrées dans le **tableau IV.12** pour chaque noyau étudié et pour leur temps de refroidissement. Le noyau étudié apparaît en gras et son temps de refroidissement caractéristique est mentionné dans la colonne de gauche. Les paramètres et leur pourcentage de contribution à l'incertitude du noyau sont présentés sous le nom du noyau étudié. Seules les contributions supérieures à 1 % sont présentées.



Temps de refroidissement (s)	Contributions des paramètres à l'incertitude de la concentration du noyau étudié (%)			
<b>5,0.10<sup>5</sup></b>	<b><sup>132</sup>I</b>			
	Yi( <sup>132</sup> Te)			58.69
	Yi( <sup>132</sup> Sb)			21.27
	Yi( <sup>132m</sup> Sb)			11.56
	Yi( <sup>132</sup> Sn)			8.2
<b>2,0.10<sup>6</sup></b>	<b><sup>140</sup>La</b>			
	Yi( <sup>140</sup> Cs)			82.3
	Yi( <sup>140</sup> Xe)			14.26
	Yi( <sup>140</sup> Ba)			3.44
<b>1,0.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>91</sup>Y</b>		<b><sup>95</sup>Zr</b>	
	Yi( <sup>91</sup> Kr)	50.55	Yi( <sup>95</sup> Sr)	57.18
	Yi( <sup>91</sup> Rb)	47.96	Yi( <sup>95</sup> Y)	34.17
	Yi( <sup>91</sup> Sr)	1.12	Yi( <sup>95</sup> Rb)	8.61
<b>1,5.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>95</sup>Nb</b>			
	Yi( <sup>95</sup> Sr)			57.18
	Yi( <sup>95</sup> Y)			34.17
	Yi( <sup>95</sup> Rb)			8.61
<b>5,5.10<sup>7</sup></b>	<b><sup>144</sup>Pr</b>			
	Yi( <sup>144</sup> La)			92.8
	Yi( <sup>144</sup> Ba)			6.9
<b>3,0.10<sup>8</sup></b>	<b><sup>90</sup>Y</b>		<b><sup>137m</sup>Ba</b>	
	Yi( <sup>90</sup> Kr)	64.72	Yi( <sup>137</sup> Xe)	82.61
	Yi( <sup>90m</sup> Rb)	28.24	Yi( <sup>137</sup> I)	17.03
	Yi( <sup>90</sup> Br)	6.46		

Tab. IV.12 : Répartition de l'incertitude de la concentration des noyaux au temps pour lequel leur contribution est maximale.

Il faut remarquer que dans ce tableau, seuls des rendements de fission indépendants apparaissent (aucune période n'intervient), donc eux seuls contribuent à plus de 1 % à l'incertitude de la concentration des noyaux. De plus, toujours dans ce tableau, aucun des noyaux étudiés n'a son propre rendement de fission indépendant qui contribue à plus de 1 %. Ceci s'explique par le fait qu'ils ne sont quasiment pas produits directement par fission car

leur rendement de fission indépendant est très faible. Ils sont créés par la décroissance de leurs parents qui proviennent eux-mêmes de la fission de  $^{235}\text{U}$  ou de décroissances. D'ailleurs, les noyaux contribuant le plus à l'incertitude sont les noyaux qui ont le rendement de fission indépendant le plus élevé de la chaîne ou qui font parti des noyaux ayant les rendements de fission indépendants les plus élevés de la chaîne. En particulier, concernant le  $^{140}\text{La}$ , le  $^{140}\text{Cs}$  a un rendement égal à  $2,11.10^{-2} \pm 23,68 \%$  et le  $^{140}\text{Xe}$  a un rendement égal à  $3,91.10^{-2} \pm 5,30 \%$ .

De cette étude, il est possible de dresser une liste des données nucléaires qu'il semble prioritaire d'améliorer afin de réduire l'incertitude de la puissance résiduelle pour les temps de refroidissement compris entre  $1,0.10^5\text{s}$  et  $1,0.10^9\text{s}$ . Cette liste prioritaire, présentées dans le **tableau IV.13**, ne contient que des rendements de fission indépendants associés de leurs incertitudes provenant de la bibliothèque de données nucléaires JEFF3.1.1.

Noyaux	Contribution à l'incertitude (%)	Rendement de fission indépendant	Incetitude (%)
$^{90}\text{Kr}$	64,72	4.50E-02	8.13
$^{90\text{m}}\text{Rb}$	28,24	7.17E-03	33.72
$^{91}\text{Kr}$	50,55	3.28E-02	15.34
$^{91}\text{Rb}$	47,96	2.23E-02	21.97
$^{95}\text{Sr}$	57,18	4.67E-02	10.03
$^{95}\text{Y}$	34,17	1.18E-02	30.55
$^{132\text{m}}\text{Sb}$	11,56	9.02E-03	18.00
$^{132}\text{Sb}$	21,27	1.22E-02	18.00
$^{132}\text{Te}$	58,69	1.61E-02	22.70
$^{140}\text{Cs}$	82,30	2.11E-02	23.68
$^{144}\text{La}$	92,80	8.09E-03	32.14
$^{137}\text{Xe}$	82,61	2.73E-02	19.21

Tab. IV.13 : Liste des noyaux dont l'incertitude sur le rendement de fission indépendant issu de la réaction  $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$  est à améliorer prioritairement.

## **D – Conclusion sur l'interprétation de la courbe de fission élémentaire thermique de l' $^{235}\text{U}$**

En conclusion, mis à part l'incertitude du rendement de fission du  $^{90}\text{Kr}$  qui semble bien connue, la liste des rendements de fission des noyaux suivant permettrait de diminuer fortement l'incertitude de la puissance résiduelle issue de la fission thermique élémentaire de l' $^{235}\text{U}$  :  $^{90\text{m}}\text{Rb}$ ,  $^{91}\text{Kr}$ ,  $^{91}\text{Rb}$ ,  $^{95}\text{Sr}$ ,  $^{95}\text{Y}$ ,  $^{132\text{m}}\text{Sb}$ ,  $^{132}\text{Sb}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{140}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{La}$ ,  $^{137}\text{Xe}$ .

# CONCLUSION

L'étude présentée dans les parties précédentes a permis d'obtenir les résultats suivants.

Le calcul précis de la puissance résiduelle nécessite de modéliser la totalité de ses contributeurs et de décrire finement leur environnement neutronique et l'évolution de leur composition. Néanmoins, il est possible de réduire drastiquement le nombre de ces contributeurs et de ces historiques d'irradiation tout en conservant une bonne approximation de la modélisation de la puissance résiduelle qui peut ensuite être utilisée pour le calcul de son incertitude. L'étude de l'essai PUIREX de puissance résiduelle sur le réacteur PHENIX entier de 2008 a permis de mettre en évidence la contribution majoritaire des assemblages du cœur, en particulier la partie fissile des assemblages de combustible fissile et les assemblages fertiles, et celle des structures. De ces contributeurs macroscopiques ont pu être sélectionnés les contributeurs microscopiques (noyaux) majoritaires. Si pour les structures ce nombre est réduit à quelques impuretés, il est de 369 (18 noyaux lourds, le reste de produits de fission) pour les assemblages de combustibles fissile et fertile pour la gamme de temps de refroidissement comprise entre 1 seconde et 30 ans. Cette sélection fait suite à la démonstration que la prise en compte des noyaux contribuant à plus de 0,01 % de la puissance résiduelle permet de la modéliser avec un biais inférieur à 1 %.

Cependant, concernant les produits de fission, il a été nécessaire de définir des noyaux « tête de chaîne » pour chaque nombre de masse A étudié afin d'éviter des pertes de masse. Ces noyaux « tête de chaîne » sont modélisés dans les équations d'évolution par leurs rendements de fission cumulés plutôt que par leurs rendements de fission indépendants. Ceci a entraîné une augmentation du nombre de noyaux à modéliser afin d'éviter des biais de calcul de la concentration des noyaux tête de chaîne. Cette augmentation a pu être limitée suite à une étude chiffrée du biais.

Il a enfin été vu qu'un dernier effet devait être ajouté à l'analyse de l'incertitude de la puissance résiduelle : l'effet de capture neutronique des produits de fission. En effet, l'apport de puissance résiduelle est non négligeable et peut augmenter fortement avec le niveau de flux et le temps d'irradiation. De plus, l'effet n'étant dû qu'à quelques noyaux, l'ajout de celui-ci n'a aucune incidence sur le temps de calcul.

## CONCLUSION

Il a été montré dans la partie III qu'aucun code ayant existé ne peut être utilisé pour répondre aux problématiques de cette thèse, c'est à dire, propager les incertitudes de toutes les données nucléaires intervenant dans les équations d'évolution sur la concentration et la puissance résiduelle. Après avoir démontré qu'il était plus efficace de développer une méthode de propagation des incertitudes déterministe plutôt que stochastique dans le cadre de la thèse car les calculs sont beaucoup plus rapides, des tests ont été réalisés afin de choisir une méthode de résolution des équations d'évolution et une méthode de calcul des coefficients de sensibilité des concentrations et de la puissance résiduelle. Il a été montré que la méthode matricielle de résolution de l'équation d'évolution est suffisamment précise et bien plus rapide que la méthode Runge-Kutta utilisée par le code de référence DARWIN, tout comme le calcul par la méthode différentielle par rapport à la méthode adjointe de référence en ce qui concerne le calcul des coefficients de sensibilité.

Les hypothèses de calcul, nécessaires à la propagation des incertitudes telle que développée dans le code CYRUS, ont été analysées afin de savoir si elles induisent des biais importants.

Il a été montré que l'hypothèse de linéarité est justifiée, que ce soit pour le calcul des sensibilités ou pour le calcul de l'incertitude. Pour le calcul de l'incertitude, le second ordre n'intervient que si les incertitudes des données sont très larges, or, les seules données ayant des incertitudes suffisamment larges (les rendements de fission) n'ont pas de terme du second ordre intervenant dans les équations puisque la relation les liants à la concentration des noyaux ou à la puissance résiduelle est linéaire.

Concernant l'hypothèse de normalité, il a été montré que les données nucléaires pouvaient être modélisées suivant des lois normales, et que bien que les lois de dispersion de la puissance résiduelle et des concentrations ne sont pas strictement définies comme des lois normales, il a été montré que dans la majorité des cas elle en est une bonne estimation.

La validation de ces hypothèses a permis d'obtenir un résultat supplémentaire très intéressant. En moyenne, un noyau dont la contribution est supérieure à 0,1 % de la puissance résiduelle, contribue à la valeur de la puissance résiduelle pendant 10 fois sa période (ou celle de son père si l'évolution de ce noyau est dictée par son père), et contribue à l'incertitude de la puissance résiduelle pendant 5 fois sa période (idem problématique du père).

Enfin, il a été montré que les résultats préliminaires de la propagation de l'incertitude des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans le cas d'une fission thermique élémentaire

## CONCLUSION

de  $^{235}\text{U}$  est quasiment équivalente avec une méthode de propagation déterministe (CYRUS) et stochastique (URANIE/MENDEL). Un travail de comparaison plus poussé pourra peut-être identifier l'origine des écarts et corriger la méthode biaisée.

La partie II permet d'appliquer le code CYRUS sur des exemples concrets.

La modélisation de l'essai de puissance résiduelle PUIREX de 2008 a été simplifiée de la façon suivante pour permettre d'obtenir une bonne estimation de l'incertitude durant le temps imparti de la thèse : un seul palier d'irradiation, un regroupement des assemblages suivant leur composition et leur place dans le réacteur, et un calcul des incertitudes pour les temps d'irradiation extrêmes et moyens. L'incertitude de l'essai PUIREX, évaluée à partir de l'incertitude des assemblages de combustible fissile et fertile du cœur, des assemblages placés en stockage interne et des protections neutroniques latérales en acier associées aux structures en acier est comprise entre 2 % et 4,5 %. Cela permet de conclure sur la bonne qualité de la modélisation de la puissance résiduelle pour des temps de refroidissement compris entre 2 jours et 12 jours, et à une surestimation de la modélisation pour des temps de refroidissement inférieurs à 2 jours.

Le calcul de l'incertitude de la concentration des noyaux étudiés dans l'essai TRAPU a permis une nouvelle interprétation de cet essai. Il a été déduit, du bon recouvrement des barres d'incertitudes expérimentales et de modélisation de la concentration des isotopes du néodyme, une évaluation du taux de combustion qui ne nécessite pas d'être modifiée. Ce même recouvrement des barres d'incertitude n'a pas permis de mettre en défaut la modélisation de la concentration des noyaux lourds étudiés malgré des écarts calcul/expérience importants. Cependant, il a permis de mettre en avant les responsables de ces larges barres d'incertitude : les sections de capture radiative des  $^{241,242}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ , les sections de fission des  $^{242\text{m}}\text{Am}$  et  $^{242}\text{Cm}$ , et la section de capture (n,2n) de  $^{238}\text{U}$ . L'incertitude des données nucléaires de cette liste doit être diminuée préférentiellement à l'incertitude de toute autre donnée.

La dernière application étudie la modélisation de la puissance résiduelle issue d'une fission thermique élémentaire de  $^{235}\text{U}$ . Cette étude est régulièrement utilisée pour valider expérimentalement les bibliothèques de données nucléaires en comparant la modélisation aux expériences. La propagation des incertitudes des données nucléaires permet d'affirmer que malgré de légers écarts entre le calcul et les expériences, ces écarts sont expliqués par l'incertitude de calcul ce qui ne remet pas en cause la bibliothèque. Les écarts calcul/expérience étant plus grands sur la puissance résiduelle gamma et bêta par rapport à la puissance résiduelle totale (pandemonium problem), le calcul de propagation des incertitudes

## CONCLUSION

sera très intéressant pour la validation du calcul de ces deux grandeurs. Sur cet exemple, l'analyse des incertitudes a permis de montrer que quasiment toute l'incertitude provient des rendements de fission indépendants et que les structures de l'incertitude pour des temps de refroidissement compris entre  $10^5$  secondes et  $10^9$  secondes sont dues aux noyaux suivants :  $^{132}\text{I}$ ,  $^{140}\text{La}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{144}\text{Pr}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ,  $^{90}\text{Y}$ . L'incertitude de ces noyaux a été reliée aux rendements de fission indépendants des noyaux suivant :  $^{90\text{m}}\text{Rb}$ ,  $^{91}\text{Kr}$ ,  $^{91}\text{Rb}$ ,  $^{95}\text{Sr}$ ,  $^{95}\text{Y}$ ,  $^{132\text{m}}\text{Sb}$ ,  $^{132}\text{Sb}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{140}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{La}$ ,  $^{137}\text{Xe}$ . L'incertitude des rendements de fission doit donc être diminuée afin de réduire l'incertitude totale de la puissance résiduelle.

# DISCUSSION & PERSPECTIVES

Cette partie permet de revenir sur les capacités du code et sur l'utilité de certains développements. De plus, elle permet de revoir certains points évoqués au cours de la thèse qui méritent une explication ou un résultat complémentaire.

## I – Intérêt du code CYRUS

Le potentiel du code CYRUS est important.

Tout d'abord, c'est un outil polyvalent. Il peut être utilisé pour toutes les études basées sur l'évolution du combustible sous et hors irradiation. Ainsi, outre des études de puissance résiduelle, et de bilan matière, l'incertitude des noyaux du crédit burn-up et la cause de cette incertitude peuvent être étudiées. Un module complémentaire peut être ajouté pour les études de dosimétrie.

De plus, c'est un outil intrusif. Outre la connaissance de l'incertitude de la puissance résiduelle, preuve a été faite qu'il permet de connaître précisément les raisons de cette incertitude. En effet, dans un premier temps, la propagation de l'incertitude des données nucléaires sur la puissance résiduelle nécessite des calculs intermédiaires qui permettent d'obtenir des informations sur l'incertitude de la concentration des noyaux contribuant à la puissance résiduelle. Mais dans un deuxième temps, des modules complémentaires ont été développés afin de tirer avantage du calcul des matrices de sensibilités. Ces modules permettent de connaître : les données nucléaires impactant le plus l'incertitude de la puissance résiduelle, les corrélations entre noyaux (provenant de la propagation des données nucléaires) augmentant l'incertitude de la puissance résiduelle.

L'avantage de la méthode matricielle de calcul du bilan matière, c'est d'abord qu'elle permet de calculer directement les valeurs des concentrations des noyaux au temps de refroidissement demandé sans passer par des temps intermédiaires comme avec la méthode Runge-Kutta (ce



qui permet de diminuer le temps de calcul). De plus, l'automatisation de cette méthode est facile à développer et le calcul, grâce à la nécessité de remplir la matrice des taux de réaction, est très visuel. Le code CYRUS permet une sortie de cette matrice. Il est alors possible de vérifier rapidement si toutes les réactions nécessaires au calcul, ainsi que leurs valeurs sont bien modélisées. La vitesse et la précision de calcul des ordinateurs permettent à cette technique de résolution des équations de devenir compétitive. Des entreprises du nucléaire comme VTT (Finlande) développent des algorithmes de résolution de l'équation d'évolution avec l'exponentielle de matrice [1]

Un grand avantage du code CYRUS est le travail réalisé afin d'obtenir des résultats lisibles. En effet, le problème des études sur l'évolution du combustible est la visualisation des résultats dû au nombre de données à étudier (400 noyaux, 3000 données nucléaires). Les matrices de sensibilité ont des tailles gigantesques (3000\*400) et y trouver rapidement l'information utile peut se révéler compliqué. Les résultats en sortie de CYRUS sont disposés de manière à être facilement transportables dans un fichier EXCEL et de façon à former des blocs d'information (les noyaux sont triés suivant le nombre de masse de manière à les rassembler ; en effet les données nucléaires d'un noyau de nombre de masse  $A$  n'aura d'impact que sur les noyaux de masse  $A-1$ ,  $A$  et  $A+1$ ). Dans ce fichier EXCEL, le système des codes couleurs (comme présenté dans la partie III chapitre 2) associés au système de loupe progressive et dégressive permet de reconnaître facilement les blocs correspondant aux données nucléaires auxquelles les noyaux sont les plus sensibles (pour les matrices de sensibilité), ou les corrélations entre les noyaux (matrices de corrélation).

Un dernier grand avantage du code CYRUS provient du calcul des matrices de sensibilité. Elles sont longues à calculer (99 % du temps de calcul de CYRUS), mais une fois calculées, si la valeur des données nucléaires n'évolue pas, il est possible de tester très rapidement plusieurs matrices de covariances sur les données nucléaires ou sur les concentrations de manière très rapide. Ainsi, il est possible de tester très rapidement (quelques minutes) l'impact : de données totalement décorrélatées (corrélations égales à 0), de données totalement corrélées (corrélations égales à 1 ou -1), ou de corrélations intermédiaires pour une propagation de l'incertitude de données nucléaires sur la puissance résiduelle. Dans le cas d'un calcul stochastique, tout le travail de propagation serait à recommencer.

Ce dernier avantage risque d'être particulièrement utile pour les prochaines études car un travail très important est entrepris au niveau européen sur l'étude de la corrélation des rendements de fission, par exemple au sein de l'AEN (Agence pour l'Energie Nucléaire) (proposition de création d'un sous-groupe du WPEC pour la réévaluation du traitement des mesures et de la corrélation des rendements de fission) [2] ou dans les laboratoires de recherche au LPSC à Grenoble [3]. Un autre exemple, les incertitudes des sections efficaces des noyaux lourds proviennent de la base de données COMMARA-2.0 qui est basée sur les données ENDF/B-VII.0. Le CEA, au DEN/DER/SPRC, réalise maintenant ses propres évaluations de covariance des sections efficaces basées sur la bibliothèque JEFF3.1.1 (covariances entre les énergies d'une même section (découpage 15 groupes) et covariances entre sections efficaces). Cette base de données est dénommée COMAC. Les calculs CYRUS ayant été réalisés avec les valeurs des sections efficaces JEFF3.1.1, il est possible de conserver les matrices de sensibilité précédemment calculées et de ne changer que les covariances liées aux sections efficaces dans la matrice de covariance des données nucléaires.

Ce dernier point peut aussi être exploité de la façon suivante. Supposons avoir amélioré une donnée nucléaire de  $x$  pourcent. Il est possible de réaliser les calculs de propagation permettant d'apprécier en quelques minutes l'impact de cette amélioration ainsi que les nouvelles contributions des autres données nucléaires à l'incertitude du résultat.

## II – Utilisation des rendements de fission cumulés

Dans les premières études sur la propagation de l'incertitude des données nucléaires sur la puissance résiduelle, aucune chaîne de réactions complexe, comme celles présentées dans cette thèse, n'était créée [4]. Pour calculer l'évolution de la concentration d'un noyau, le noyau père était calculé grâce à son rendement de fission cumulé, et le noyau fils grâce à la décroissance de son (ou de ses) noyau(x) père(s) [5]. Certaines études, plutôt que de commencer au père commencent au grand-père [6], mais aucune comparaison avec la méthode précédente n'a été réalisée.

La conclusion de ces études était que les données nucléaires contribuant le plus à l'incertitude étaient les énergies de décroissance et que les rendements de fission étaient bien connus. En effet, au moment de ces études, les valeurs des énergies de décroissance étaient très mal

connues et leurs incertitudes étaient larges. A l'inverse, l'utilisation des rendements de fission cumulés, bien mieux connus que les rendements de fission indépendants, permettait une contribution à l'incertitude de la puissance résiduelle plus faible.

Les incertitudes des rendements de fission indépendants étant, de nos jours, toujours bien plus grandes que les incertitudes des rendements de fission cumulés, il serait intéressant de pouvoir tirer partie de cet état de fait.

Dans la partie II chapitre 2, les conditions d'une utilisation des rendements de fission cumulés pour le calcul des concentrations des noyaux avec un biais négligeable ont été obtenues. Dans le cas général (le noyau fils est plus stable que le noyau père), il faut que le temps d'irradiation soit au moins cinq fois supérieur à la demi-vie du noyau étudié, c'est-à-dire, que le noyau soit saturé avant la fin de l'irradiation.

Dans le cas où le noyau étudié décroît plus vite que le noyau père, le temps d'irradiation doit être comparé à la demi-vie du noyau père selon le même facteur.

En conséquence, il serait possible de détailler encore plus le calcul de puissance résiduelle PUIREX de 2008 afin de connaître les noyaux saturés à la fin de l'irradiation et d'utiliser les rendements cumulés de fission pour calculer l'incertitude de leur concentration. Ceci permettrait de diminuer légèrement l'incertitude de la puissance résiduelle totale.

### **III – Etude de l'impact des sections efficaces de capture sur l'incertitude de la puissance résiduelle**

Il a été montré dans la partie II chapitre 2 que l'effet de capture neutronique des produits de fission peut avoir un impact non négligeable sur le calcul de la valeur de la puissance résiduelle. Or l'étude de l'impact de cet effet sur l'incertitude de la puissance résiduelle n'a jamais été réalisée par le passé.

Durant la thèse, il a été décidé de permettre le calcul de la sensibilité de la concentration des noyaux par rapport aux sections efficaces de capture neutronique des produits de fission, mais de ne pas propager les incertitudes. L'objectif était de pouvoir analyser l'impact sur la matrice

de sensibilité tout en permettant de comparer les résultats préliminaires provenant de CYRUS avec des études antérieures.

Puisque l'impact de la propagation de ces incertitudes n'a pas été réalisé sur les applications de la partie IV, un test est ici présenté. Il a été réalisé sur un assemblage fissile de cœur interne de PHENIX irradié pendant un an par un flux neutronique de  $3,0 \cdot 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/s de spectre rapide. L'incertitude des sections efficaces de capture neutronique des produits de fission a été portée à 20 % car certaines sont mal connues et la base COMMARA-2.0 ne propose pas de covariance pour la majorité de ces sections efficaces.

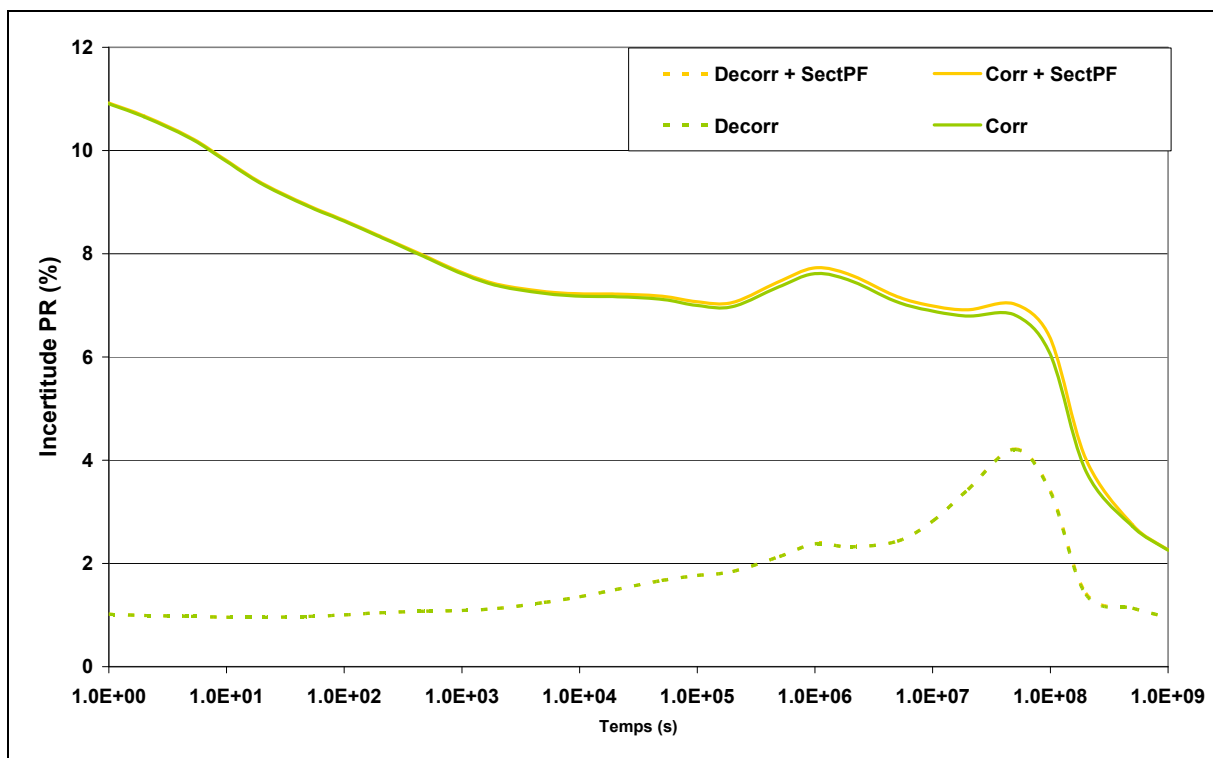


Fig. P&D.1 : Contribution des sections efficaces à l'incertitude totale de la puissance résiduelle.

Les résultats de la propagation sont présentés sur la **figure P&D.1**. Par rapport aux résultats présentés dans les parties précédentes de la thèse, ces résultats proviennent d'une version antérieure de CYRUS. Dans cette version, les corrélations entre les concentrations des noyaux en fin d'irradiation et en refroidissement provenant de la propagation des incertitudes des données nucléaires n'étaient pas propagées (seules les variances l'étaient). En conséquence, lors du calcul de l'incertitude de la puissance résiduelle, deux options étaient possibles : soit décorréliser toutes les variables (concentrations, énergies, périodes) pour minimiser

l'incertitude, soit corrélér positivement toutes les variables pour maximiser l'incertitude. La réalité se trouve entre ces deux hypothèses.

L'impact des sections est faible pour l'exemple étudié. Il n'ajoute pratiquement aucune incertitude dans le cas totalement décorrélé, et que quelques dixièmes de pourcent d'incertitude à  $10^6$  secondes et  $10^8$  secondes (moment où l'impact de l'effet de capture est le plus fort, voir partie II chapitre 2) pour le cas totalement corrélé.

Les conditions étant pratiquement les mêmes pour les assemblages de combustibles fissiles de l'essai PUIREX de 2008, l'impact de l'effet de capture sur la puissance résiduelle n'aurait pas été très important. Par contre, des tests sont à réaliser sur les assemblages fertiles qui sont irradiés beaucoup plus longtemps.

## IV – Retour sur le biais du $^{144}\text{Nd}$ dans l'expérience TRAPU

Dans la partie IV, dans le paragraphe concernant l'interprétation de l'essai TRAPU, la modélisation du taux de combustion est vérifiée par rapport aux isotopes du néodyme car les rendements de fission de ces noyaux sont très bien connus, qu'ils sont stables et que leurs sections efficaces de capture neutronique sont faibles.

Le noyau reconnu comme étant le mieux connu et le plus représentatif du taux de combustion parmi les isotopes du néodyme est le  $^{148}\text{Nd}$ , en conséquence, les conclusions ont été tirées d'après ce noyau. Néanmoins, il n'est pas tout à fait satisfaisant d'observer un écart sur la concentration du  $^{144}\text{Nd}$  qui ne soit pas recouvert par les barres d'incertitudes alors que les données nucléaires modélisant l'évolution de la concentration de ce noyau sont sensées être bien connues.

Ce paragraphe propose d'étudier les données impactant le  $^{144}\text{Nd}$  dans le but d'analyser cet écart et de montrer les capacités d'analyse en profondeur du code CYRUS.

La concentration du  $^{144}\text{Nd}$  est particulièrement sensible aux données nucléaires présentées dans le **tableau P&D.1** et le **tableau P&D.2** : rapport de branchement du  $^{144}\text{Ce}$  vers le  $^{144}\text{Pr}$ , période du  $^{144}\text{Ce}$ , rendement de fission cumulé rapide du  $^{239}\text{Pu}$  vers le  $^{144}\text{Ce}$ , sections efficaces

de fission rapide du  $^{239}\text{Pu}$  et de l' $^{238}\text{U}$ , rendement de fission cumulé rapide de l' $^{238}\text{U}$  vers le  $^{144}\text{Ce}$ .

Données nucléaires	Sensibilité relative
CE144g_br_PR144g	0.89
CE144g_periode	-0.64
PU239g_r_rap_CE144g	0.56
PU239g_fission_rap	0.54
_U238g_fission_rap	0.14
_U238g_r_rap_CE144g	0.13

Tab. P&D.1 : Sensibilité de la concentration du  $^{144}\text{Nd}$  aux données nucléaires.

Données nucléaires	Contribution à l'incertitude (%)
PU239g_r_rap_CE144g	49.03
ND143g_capture_g	31.33
_U238g_r_rap_CE144g	7.16
PU240g_r_rap_CE144g	4.01
PU239g_fission_rap	3.17
PU240g_fission_rap	1.35
PU241g_r_rap_CE144g	1.18

Tab. P&D.2 : Contribution des données nucléaires à l'incertitude du  $^{144}\text{Nd}$ .

Les paragraphes suivants analysent l'impact de ces données nucléaires sur l'incertitude de la concentration du  $^{144}\text{Nd}$ .

Le  $^{144}\text{Nd}$  est très sensible au rapport de branchement du  $^{144}\text{Ce}$  vers le  $^{144}\text{Pr}$ . L'incertitude de ce rapport de branchement est inconnue et a été choisie à 0,001 %. Une incertitude plus forte augmenterait l'incertitude du  $^{144}\text{Nd}$ , mais il n'y a pas de raison de le faire pour la raison suivante. Le  $^{144}\text{Ce}$  décroît vers le  $^{144}\text{Pr}$  et le  $^{144\text{m}}\text{Pr}$ . Le  $^{144\text{m}}\text{Pr}$  décroît vers le  $^{144}\text{Pr}$ . Or ces deux noyaux ont des périodes très courtes par rapport à l'expérience TRAPU. Donc toute la matière partant du  $^{144}\text{Ce}$  se retrouve dans le  $^{144}\text{Nd}$  très rapidement.

Le  $^{144}\text{Nd}$  est très sensible à la période du  $^{144}\text{Ce}$ , mais celle-ci est bien connue car le  $^{144}\text{Ce}$  est un noyau d'intérêt, donc bénéficiant d'un retour d'expérience important. Un changement

drastique de la valeur de la période du  $^{144}\text{Ce}$  qui permettrait de modifier la valeur de la concentration du  $^{144}\text{Nd}$  n'est pas envisageable.

Le raisonnement est le même que dans le paragraphe précédent pour les rendements de fission cumulés. Même si la sensibilité est forte, et conséquemment le potentiel de variation de la concentration du  $^{144}\text{Nd}$  élevée, les incertitudes sont trop faibles pour qu'on s'attende à un changement drastique de la valeur.

La section de capture du  $^{143}\text{Nd}$  est un paramètre qui contribue très fortement à l'incertitude de la concentration du  $^{144}\text{Nd}$ . Ceci est dû à la forte incertitude associée arbitrairement à ce paramètre (20 %). Cependant la sensibilité du  $^{144}\text{Nd}$  à ce paramètre est faible car cette donnée nucléaire est en compétition avec les autres voies de formation du  $^{144}\text{Nd}$ . Une façon de réduire l'écart calcul mesure du  $^{144}\text{Nd}$  serait de baisser la valeur de la section, mais la sensibilité du  $^{144}\text{Nd}$  à celle-ci est déjà bien trop faible pour avoir un impact suffisamment important.

Ces raisons expliquent la faible incertitude du  $^{144}\text{Nd}$ , mais ne permet cependant pas de mettre en avant une donnée nucléaire pour réduire l'écart. Deux conclusions sont possibles : soit l'incertitude de certaines des données nucléaires présentées est sous-estimée, soit l'incertitude du procédé expérimental est sous-estimée.

## **V – Retour sur les codes de propagation des incertitudes stochastique**

### **A – Aide à la validation de l'hypothèse des lois de distribution normales dans le code CYRUS**

Durant la thèse, un gros effort a été réalisé pour analyser l'impact des hypothèses simplificatrices du code CYRUS. Les deux principales hypothèses sont : la non-prise en compte des effets supérieurs à ceux du premier ordre et des données nucléaires, concentrations et puissance résiduelle suivant des lois de distribution normales.

La comparaison des résultats du code CYRUS et du couplage URANIE/MENDEL permet d'apprécier, sur un résultat concret, l'impact de ces hypothèses. D'après les résultats

préliminaires de la comparaison de l'incertitude de la puissance résiduelle issue d'une fission élémentaire de  $1^{235}\text{U}$ , ces hypothèses semblent être correctes puisque les résultats des deux codes sont quasiment équivalents.

Le code URANIE/MENDEL permet, en plus, d'apprécier la forme de la loi de distribution associée à la puissance résiduelle et de laquelle est obtenu le domaine de confiance à un écart-type. La **figure P&D.2** présente ces lois de dispersion pour différents temps de refroidissement. L'analyse sera brève car seules ces figures sont disponibles pour le moment, les données chiffrées devraient être accessibles sous peu. La forme de ces lois paraît être fortement symétrique, et les queues des distributions semblent courtes. Il est fort probable que ces lois puissent être modélisées comme des gaussiennes. Par contre, il semblerait que la statistique mériterait d'être plus grande afin d'obtenir des histogrammes plus lisses.

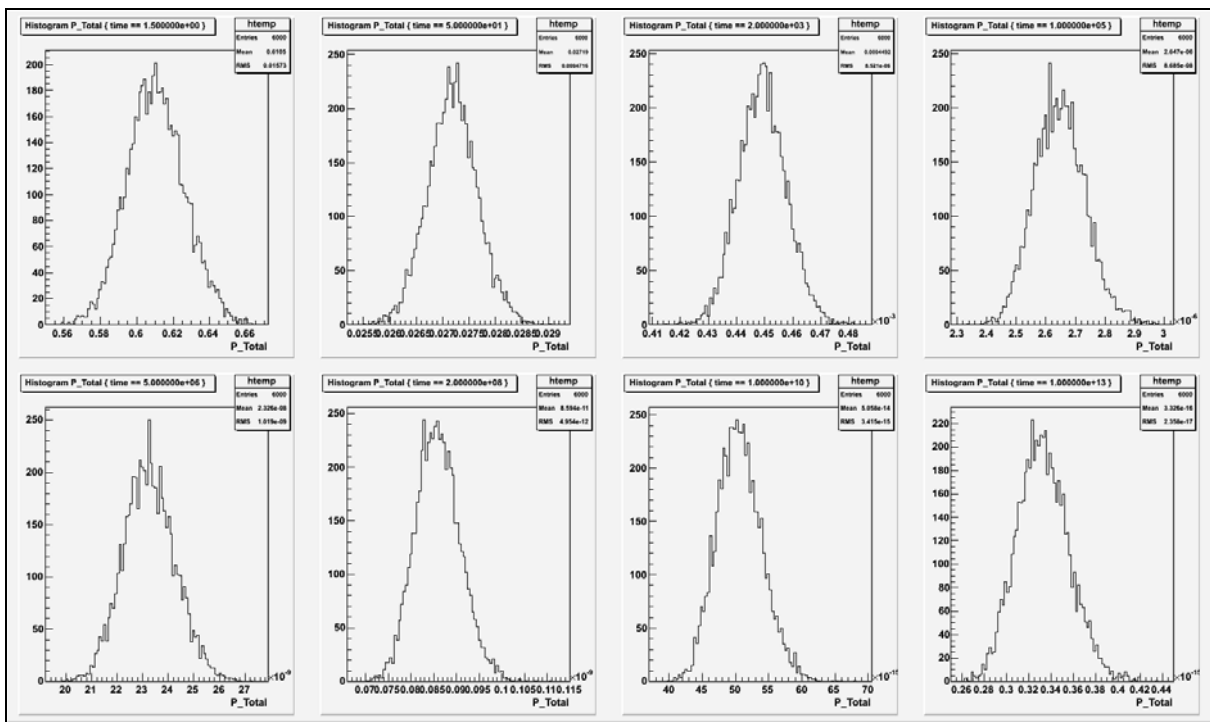


Fig. P&D.2 : Dispersion de la puissance résiduelle lors du calcul URANIE/MENDEL pour les temps suivants de gauche à droite. (**Axes** : valeurs de la puissance résiduelle en abscisses, nombre de coups en ordonnées; **en haut** : 1,5s, 50s, 2000s,  $1.10^5$ s, **en bas** :  $5.10^6$ s,  $2.10^8$ s,  $1.10^{10}$ s,  $1.10^{13}$ s). (Communication interne)



## B – Retour sur les lois de distribution des données nucléaires d'écart-type important

Le choix d'une loi de distribution pour un paramètre en entrée du code peut être délicat. Le choix le plus commun est une loi de distribution normale car ces paramètres d'entrée du code sont obtenus par des expériences pour lesquelles les appareils de mesure fournissent un résultat issu de la statistique.

Or un problème survient quand les écarts-types de ces paramètres sont grands. Il a été montré dans la partie III chapitre 3 que les lois de distribution gaussiennes associées à des paramètres possédant de grands écarts-types pouvaient modéliser une probabilité non-négligeable d'échantillonner le paramètre avec des valeurs négatives.

Le choix réalisé dans l'étude de l'incertitude de la puissance résiduelle émanant d'une fission élémentaire thermique de  $^{235}\text{U}$  réalisée par le DM2S/SERMA et dont les résultats sont présentés dans la partie III chapitre 3, est d'utiliser des lois gaussiennes pour effectuer le tirage aléatoire des paramètres, puis de rejeter les jeux de données présentant des valeurs de paramètres négatives. Cela est presque équivalent à la réalisation d'un tirage aléatoire des paramètres suivant des lois gaussiennes tronquées, mais sans utiliser le formalisme des lois gaussiennes tronquées pour analyser le résultat ce qui a nécessité des études a posteriori pour valider les résultats.

Une autre possibilité est d'utiliser des lois de distribution log-normale, comme dans l'étude réalisée par DIEZ [7] sur un autre exemple traitant de la puissance résiduelle. Tous les rendements de fission indépendants, dont les écarts-types sont importants (voir partie III chapitre 2), sont échantillonnés suivant ces lois log-normales.

La différence entre ces deux possibilités est présentée sur la **figure P&D.3**. La loi de distribution log-normale n'est définie que sur l'ensemble des réels positifs ce qui empêche la production de valeurs négatives. De plus, plus le rapport moyenne sur variance du paramètre est grand, plus la loi de distribution log-normale tend vers une gaussienne.

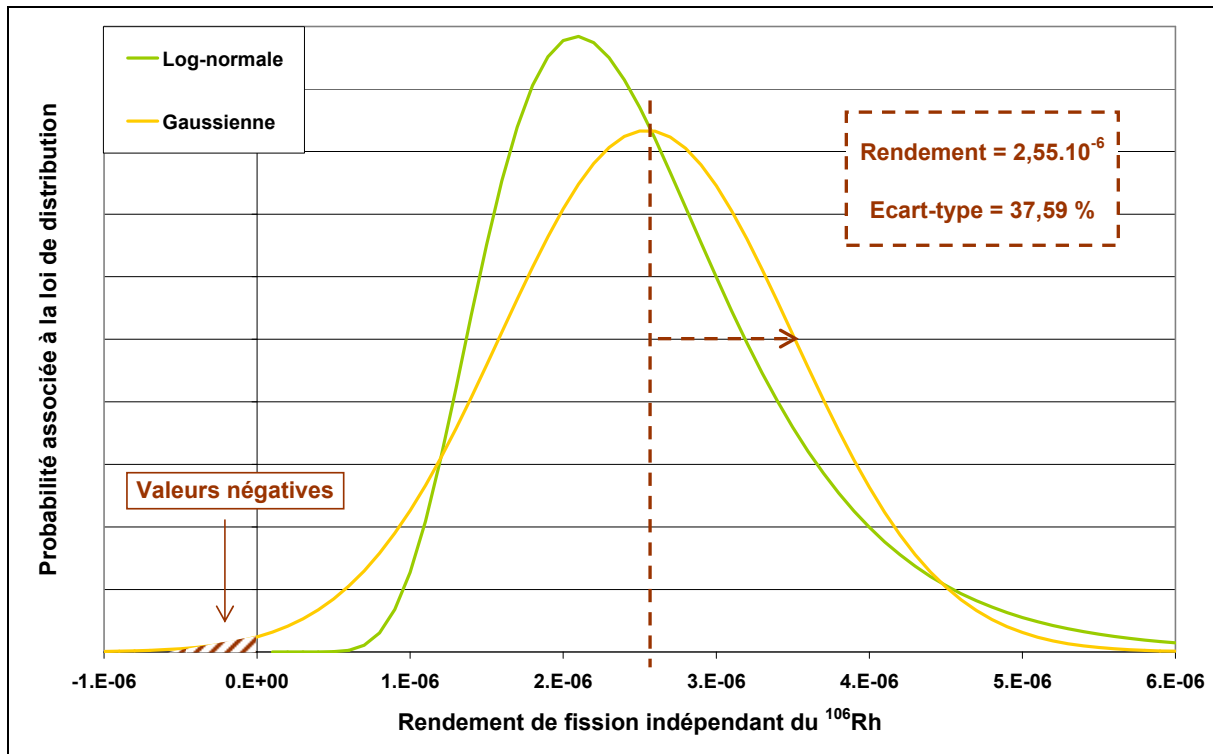


Fig. P&D.3 : Echantillonnage du rendement du  $^{106}\text{Rh}$  suivant une loi de dispersion normale ou log-normale.

Ces deux solutions, si elles permettent de résoudre le problème du tirage de valeurs négatives, ont pour principal inconvénient qu'elles ne sont pas symétriques. Cela signifie que la valeur du paramètre la plus probable n'est pas égale à sa valeur moyenne. Dans ce cas, le risque de la propagation de ces lois de distribution, évoqué par DIEZ, est d'obtenir une évaluation de la moyenne du résultat différente du résultat obtenu de manière déterministe.

Cela nécessite, soit des études de validation a posteriori comme il a été fait par le DM2S/SERMA ou par DIEZ, ou de revoir la manière de présenter les résultats. La deuxième solution présentée signifie que les résultats ne seraient plus présentés avec une valeur moyenne et un écart-type, mais sous la forme d'un domaine de probabilité.

## DISCUSSION & PERSPECTIVES

# REFERENCES

## INTRODUCTION

- [1] **A. TSILANIZARA & al. (2000)** DARWIN : an evolution code system for a large range of applications, Journal of Nuclear Science and Technology., Supplement 1, pp. 845-849, March 2000
- [2] **A. SANTAMARINA (2007)** From integral experiments to nuclear data improvements, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, April 22-27, 2007
- [3] **P. BLAISE & al. (2010)** The VVQ&UQ process for neutronics code packages : issues on nuclear data assimilation and transposition for the current and future nuclear systems, 2nd Workshop on Verification and Validation for nuclear system analysis, Myrtle Beach, South Carolina, USA, May 24-28, 2010
- [4] **L. SAN FELICE & al. (2012)** Experimental validation of the DARWIN2.3 package for fuel cycle applications, PHYSOR 2012, Advances in Reactor Physics – linking Research, Industry and Education, Knoxville, Tennessee, USA, April 15-20, 2012, (in press)
- [5] **V. ALLAIS (1998)** Qualification du formulaire DARWIN pour les études du cycle du combustible pour les réacteurs à eau bouillante, thèse de doctorat de l'université de Provence Aix-Marseille 1, France, 1998
- [6] **J. TOMMASI & G. NOGUERE (2008)** Analysis of the PROFIL and PROFIL-2 sample irradiation experiments in PHENIX for JEFF3.1 nuclear data validation, Nuclear Science and Engineering, Vol. 160, N. 2, pp. 232-241, October 2008
- [7] **A. D'ANGELO & al. (1990)** Analysis of Sample and Fuel Pin Irradiation in PHENIX for Basic Nuclear Data Validation, Nuclear Science and Engineering, Vol. 105, pp. 244, 1990
- [8] **L. MARTIN-DEIDIER & al. (1984)** Expérience DOUBLON : résultats des analyses effectuées sur deux assemblages fertiles de première et deuxième couronne de PHENIX, rapport SEN/88-199, mars 1984

## REFERENCES

- [9] **M. AKIYAMA & al. (1982)** Measurements of gamma-ray decay heat of fission products for fast neutron fissions of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ , Journal of the Atomic Energy Society of Japan, Vol. 24, N. 9, pp. 709-722, 1982
- [10] **M. AKIYAMA & al. (1982)** Measurements of beta-ray decay heat of fission products for fast neutron fissions of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ , Journal of the Atomic Energy Society of Japan, Vo. 24, N. 10, pp. 803-816, 1982
- [11] **J.K. DICKENS & al. (1980)** Fission-product energy release for times following thermal neutron fission of  $^{235}\text{U}$  between 2 and 14 000 s, Nuclear Science and Engineering, Vol. 74, pp. 106-129, 1980
- [12] **G. GILLET & al. (1990)** Measurement of Decay Heat and Comparison with Predictions, Nuclear Science and Engineering, Vol. 106, N. 1, pp. 1-98, 1990
- [13] **R.E. SCHENTER & F. SCHMITTROTH (1975)** Radioactive decay heat analyses, Proceedings of the Conference Nuclear Cross Sections and Technology, Washington, D.C., USA, March 3-7, 1975, Vol. 1, pp. 21-28
- [14] **C. DEVILLERS & al. (1975)** Sensitivity of the afterheat from  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  thermal fission to errors in fission product nuclear data, Proceedings of the Conference Nuclear Cross Sections and Technology, Washington, D.C., USA, March 3-7, 1975, Vol. 1, pp. 29-38
- [15] **F. SCHMITTROTH (1976)** Uncertainty Analysis of Fission-Product Decay-Heat Summation Methods, Nuclear Science and Engineering, Vol. 59, pp. 117-139, 1976
- [16] **B.I. SPINRAD (1977)** The sensitivity of decay power to uncertainties in fission product yields, Nuclear Science and Engineering, Vol. 62, pp. 35-44, 1977
- [17] **F. SCHMITTROTH & R.E. SCHENTER (1977)** Uncertainties in fission product decay heat calculations, Nuclear Science and Engineering, Vol. 63, pp. 276-291, 1977
- [18] **G. RUDSTAM (1980)** Uncertainty of decay heat calculations originating from errors in the nuclear data and the yields of individual fission products, Journal of Radioanalytical Chemistry, Vol. 55, N. 1, pp. 79-99, 1980
- [19] **M.F. JAMES (1987)** The calculation of sensitivities of nuclide inventories and decay power, Proceedings of a specialist meeting on data for decay heat predictions, Studsvik, Sweden, September 7-10, 1987, pp. 289-301

## REFERENCES

- [20] **J. KATAKURA (1992)** Analysis of uncertainties in summation calculations of decay heat using JNDC FP nuclear data library, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 29, N. 1, pp. 11-23, January 1992
- [21] **R.W. MILLS (1995)** Fission product yield evaluation, thèse de doctorat de l'université de Birmingham, March 1995
- [22] **K. OYAMATSU & al. (1997)** Uncertainties in summation calculations of aggregate decay heat and delayed neutron emission with ENDF/B-VI, Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy, May 19-24, pp. 756-758

## PARTIE I

- [1] **P. CURIE & A. LABORDE (1903)** Sur la chaleur dégagée spontanément par les sels de radium, Comptes-Rendus hebdomadaires des séances de l'académie des sciences de Paris, Vo. 136, N. 1, pp. 673-675
- [2] **O. LODGE (1903)** Radium Emission, Nature, Vol. 67, N. 1744, pp. 511, April 2, 1903
- [3] **E. RUTHERFORD (1904)** Radio-activity, 2<sup>nd</sup> edition, 1904
- [4] **H. BATEMAN (1910)** The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radio-active transformations, Proceedings of the Cambridge Philosophical Society, Vol. 15, October 26 1908 – June 6 1910, pp. 423-427, 1910
- [5] **W. RUBINSON (1949)** The Equations of Radioactive Transformation in a Neutron Flux, Journal of Chemical Physics, Vol. 17, N. 6, pp. 511-590, 1949
- [6] [www.asn.fr](http://www.asn.fr)
- [7] Clef CEA n°45, Automne 2001
- [8] **C. WAGEMANS (1991)** The Nuclear Fission Process, CRC Press, Boca Raton, USA, 1991
- [9] **J.R. LAMARSH**, Introduction to nuclear reactor theory, Addison-Wesley Publishing Company.
- [10] **C.D. CORYELL & N. SUGARMAN**, Introduction to part IV : Studies of the fission process, National Nuclear Series, Div. IV : Plutonium Project, Vol. 9 : Radiochemical Studies

## REFERENCES

the fission products, Book I, Chapter 4 : Studies of the fission process, Article 34, pp. 344-350

[11] **A. ALGORA & J.L. TAIN (2012).** Decay Heat and Nuclear Data, Nuclear Reactors, Amir Zacarias Mesquita (Ed.), ISBN: 978-953-51-0018-8, InTech, Available from: <http://www.intechopen.com/books/nuclear-reactors/decay-heat-and-nuclear-data>

[12] **K. WAY & E.P. WIGNER (1948)** The Rate of Decay of Fission Products, Physical Review, Vol. 73, N. 11, pp. 1318-1330, June 1948

[13] **L.A. KHAN (1999)** Study of reactor design parameters, thèse de doctorat de l'université du Pendjab, Lahore, Pakistan, 1999

[14] **M. LOTT & al. (1973)** Puissance résiduelle totale émise par les produits de fission thermiques de l' $^{235}\text{U}$ , Journal of Nuclear Energy, Vol. 27, N.9, pp. 597-605, September 1973

[15] **H.V. NGUYEN & al. (1997)** Decay heat measurements following neutron fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ , Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy, May 19-24, 1997, pp. 835-838

[16] **J.K. DICKENS & al. (1980)** Fission-product energy release for times following thermal neutron fission of  $^{235}\text{U}$  between 2 and 14 000 s, Nuclear Science and Engineering, Vol. 74, pp. 106-129, 1980

[17] **J. CRANCON & al. (1980)** Réalisation d'une installation de pneumatique rapide pour analyse de produits de fission, Nuclear Instruments and Methods, Vol. 177, N. 2-3, pp. 399-404, November 1980

[18] **F. STORRER (1993)** Contribution à l'élaboration et la qualification de la bibliothèque DARLING des données nucléaires de base du formulaire multifilière DARWIN de la physique du cycle du combustible, thèse de l'université Paris Sud XI, Orsay, France, 1993

[19] **A. TSILANIZARA, C.M. DIOP, T-D. HUYNH (2005)** Formulaire DARWIN : notice de principe, RT SERMA/LEPP/05-3772A, 2005.

[20] <http://www.scilab.org/>

[21] **M.W. KUTTA (1901)** Beitrag zur näherungsweise Integration totaler Differentialgleichungen, Zeitschrift für Mathematik und Physik, Vol. 46, pp. 435-453, 1901

[22] **J.F. PERKINS & R.N. KING (1958)** Energy Release from the Decay of Fission Products, Nuclear Science and Engineering, Vol. 3, pp. 726-746, 1958

## REFERENCES

- [23] **J.R. STEHN & E.F. CLANCY (1958)** Proceedings of the 2<sup>nd</sup> International Conference on the peaceful uses of Atomic Energy, Geneva, A/conf 15/0/1071
- [24] **L.B. BORST (1942)** Estimates of amount of radiation and of accompanying energy liberation from fission products, National Nuclear Series, Div. IV : Plutonium Project, Vol. 9 : Radiochemical Studies the fission products, Book I, Chapter 4 : Studies of the fission process, Article 34, pp. 344-350
- [25] **E.L. BRADY & A. TURKEVICH (1945)** Project Handbook, Report CL-697, Chap. III, D, 6, March 1945
- [26] **R.A. DAY & C.V. CANNON (1942)** Direct calorimetric study of fission-product decay in active slugs, National Nuclear Series, Div. IV : Plutonium Project, Vol. 9 : Radiochemical Studies the fission products, Book I, Chapter 4 : Studies of the fission process, Article 41, pp. 422-433
- [27] **A. TOBIAS (1980)** Decay Heat, Progress in Nuclear Energy, Vol. 5, pp; 1-93 ; CEBG-RD/B/N4611
- [28] ANSI/ANS-5.1-1973 : Decay Heat Power in Light Water Reactors
- [29] **M. LOTT (1973)** Residual Power due to Fission Products, Fission Nuclear Data, IAEA-169, Vol. 2, Proceedings of a panel on fission product nuclear data organized by the AIEA and held in Bologna, Italy, November 26-30, 1973, pp. 115-162
- [30] **S.J. FRIESENHAHN & N.A. LURIE (1977)** IRT 0034-004, American Nuclear Society Proceedings of a Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho, July 31 – August 4, 1977, CONF-770708, II, 163, Idaho State University
- [31] **L.M. GROSSMAN & al. (1977)** American Nuclear Society Proceedings of a Topical Meeting on Thermal Reactor Safety, Sun Valley, Idaho, July 31 – August 4, 1977, CONF-770708, II, 207, Idaho State University
- [32] **J.L. YARNELL & P.J. BENDT (1976)** LA-NUREG-6713, Los Alamos Scientific Laboratory
- [33] **M. AKIYAMA & S. AN (1982)** Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Antwerp, Belgium, September 6-10, 1982, pp. 237



## REFERENCES

- [34] **M. AKIYAMA & al. (1982)** Measurements of gamma-ray decay heat of fission products for fast neutron fissions of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ , Journal of the Atomic Energy Society of Japan, Vol. 24, N. 9, pp. 709-722, 1982
- [35] **M. AKIYAMA & al. (1982)** Measurements of beta-ray decay heat of fission products for fast neutron fissions of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$ , Journal of the Atomic Energy Society of Japan, Vol. 24, N.10, pp. 803-816, 1982
- [36] **E.H. SEABURY (1997)** Decay heat measurements following neutron fission of  $^{238}\text{U}$ , Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Bologna, Italy, May 19-24, 1997, pp. 753-755
- [37] **S. BOURGANEL (2002)** Conception d'une expérience de mesure de la puissance résiduelle d'un combustible irradié – l'expérience MERCI, thèse de doctorat de l'université de l'Institut National Polytechnique de Grenoble, France, 2002
- [38] **SKB (2006)** Measurement of decay heat in spent nuclear fuel at the Swedish interim storage facility, Clab, R-05-62, 2006
- [39] **S. MAEDA, T. SEKINE, T. AOYAMA (2004)** Measurement and Analysis of decay heat of fast reactor spent MOX fuel, Annals of Nuclear Energy, Vol. 31, N. 10, pp. 1119-1133, July 2004
- [40] **G. GILLET & al.(1990)** Measurement of Decay Heat and Comparison with Predictions, Nuclear Science and Engineering, Vol. 106, N. 1, pp. 94-97, 1990
- [41] **G. RIMPAULT & al. (2002)** The ERANOS Code and Data System for Fast Reactor Neutronic Analyses, Proceedings of the International Conference PHYSOR 2002, Seoul, Korea, October 7-10, 2002
- [42] Index to the JEF-1 Nuclear Data Library, Vol. I, General Purpose File, July 1985
- [43] **M.E MEEK & B.F. RIDER (1974)** Compilation of fission product yields, Vallecitos nuclear center, 1974
- [44] **K. TASAKA (1977)** Effects of Neutron Capture Transformations on the Decay Power of Fission Products, Nuclear Science and Engineering, Vol. 62, N.1, pp. 167-174, 1977
- [45] **J. REBAH (1998)** Incertitudes sur la puissance résiduelle dues aux incertitudes sur les données des produits de fission, thèse de doctorat de l'université de Paris Sud XI, Orsay, France

## REFERENCES

- [46] **A. TSILANIZARA & al. (2000)** DARWIN : an evolution code system for a large range of applications, Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 1, pp. 845-849, March 2000
- [47] **W.L. OBERKAMPF & al. (2004)** Verification, Validation and predictive capability in computational engineering and physics, Applied Mechanics Reviews, Vol. 57, N. 5, pp. 345-384, September 2004
- [48] **B.H. THACKER (2004)** Concepts of model verification and validation, LA-14167-MS, October 2004
- [49] Revue Générale Nucléaire, Le réacteur Phénix, Bilan de 35 ans de fonctionnement, 2009 n°1 janvier-février; édité par SFEN
- [50] **L. SAN FELICE & al. (2012)** Experimental validation of the DARWIN2.3 package for fuel cycle applications, PHYSOR 2012, Advances in Reactor Physics – linking Research, Industry and Education, Knoxville, Tennessee, USA, April 15-20, 2012 (in press)
- [51] **J.C. JABOULAY & S. BOURGANEL (2012)** Analysis of MERCI decay heat measurement for PWR UO<sub>2</sub> fuel rod, Nuclear Technology, Vol. 177, N. 1, pp. 73-82, January 2012
- [52] **A. D'ANGELO & al. (1990)** Analysis of Sample and Fuel Pin Irradiation in PHENIX for Basic Nuclear Data Validation, Nuclear Science and Engineering, Vol. 105, pp. 244, 1990
- [53] **J. TOMMASI & G. NOGUERE (2008)** Analysis of the PROFIL and PROFIL-2 sample irradiation experiments in PHENIX for JEFF3.1 nuclear data validation, Nuclear Science and Engineering, Vol. 160, pp. 232-241, 2008
- [54] **L. MERCATALI, G. PALMIOTTI, M. SALVATOIRES (2003)** Analysis of PROFIL-1 Irradiation Experiment and Related Uncertainty Assessment, Transaction of the American Nuclear Society Annual Meeting, San Diego, California, June 2003, Vol. 88, pp. 509
- [55] **L. MARTIN-DEIDIER, C. FAURE, R. GISBERT (1984)** Rapport SEN/84-199
- [56] **G. GILLET & al. (1990)** Measurement of decay heat and comparison with predictions, Nuclear Science and Engineering, Vol. 106, pp. 94-97, 1990
- [57] **C. DEVILLERS & al. (1973)** Mesure de la puissance résiduelle des éléments combustibles de Rapsodie – Fortissimo par calorimétrie, Bulletin d'Informations Scientifiques et Techniques, n°181, mai 1973

[58] **J.C. BENOIT & al. (2012)** Proceedings of the Conference Advances in Reactor Physics – Linking Research, Industry, and Education (PHYSOR 2012), Knoxville, Tennessee, USA, April 15-20, 2012 (in press)

## PARTIE II

[1] **A. VASILE & al. (2011)** The Phenix Final Tests, Proceedings of the International Conference on Advances in Nuclear Power Plants, Nice, France, May 2-5, 2011, paper 11298, pp. 659-663

[2] **J.C. BENOIT & al. (2012)** Proceedings of the Conference Advances in Reactor Physics – Linking Research, Industry, and Education (PHYSOR 2012), Knoxville, Tennessee, USA, April 15-20, 2012 (in press)

[3] **J.-F. SAUVAGE**, PHENIX, une histoire de cœur et d'énergie, édité par le CEA Marcoule

[4] **A. SANTAMARINA & al. (2009)**, The JEFF3.1.1 nuclear data library, JEFF Report 22, NEA n°6807, OCDE

[5] **S. MARGUET**, La physique des réacteurs nucléaires, Collection EDF R&D, 2011

[6] **K. TASAKA (1977)** Effects of Neutron Capture Transformations on the Decay Power of Fission Products, Nuclear Science and Engineering, Vol. 62, N. 1, pp. 167-174, 1977

[7] **M. GOEPPERT-MAYER (1935)** Double Beta disintegration, Physical Review, Vol. 48, pp. 512 - 516, September 1935

## PARTIE III

[1] **R.E. SCHENTER & F. SCHMITTROTH (1975)** Radioactive decay heat analyses, Proceedings of the Conference Nuclear Cross Sections and Technology, Washington, D.C., USA, March 3-7, 1975, Vol. 1, pp. 21-28

[2] **F. SCHMITTROTH (1976)** Uncertainty Analysis of Fission-Product Decay-Heat Summation Methods, Nuclear Science and Engineering, Vol. 59, pp. 117-139, 1976

[3] **B.I. SPINRAD (1977)** The sensitivity of decay power to uncertainties in fission product yields, Nuclear Science and Engineering, Vol. 62, pp. 35-44, 1977

## REFERENCES

- [4] **F. SCHMITTROTH & R.E. SCHENTER (1977)** Uncertainties in fission product decay heat calculations, Nuclear Science and Engineering, Vol. 63, pp. 276-291, 1977
- [5] **C. DEVILLERS & al. (1975)** Sensitivity of the Afterheat from  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  thermal fission to errors in fission product nuclear data, Proceedings of the Conference Nuclear Cross Sections and Technology, Washington, D.C., USA, March 3-7, 1975, Vol. 1, pp. 29-38
- [6] **G.GROENEFELD (1976)** The decay heat of fission products and actinides of the SNR-300, INTERATOM, Technischer Bericht ITB 76/08, 1976
- [7] **R.F. BURSTALL (1979)** FISPIN – a computer code for nuclide inventory calculations, UK Atomic Energy Authority Report, ND-R-328(R), 1979
- [8] **M.F. JAMES (1987)** The calculation of sensitivities of nuclide inventories and decay power, Proceedings of a specialist meeting on data for decay heat predictions, Studsvik, Sweden, September 7-10, 1987, pp. 289-301
- [9] **G. RUDSTAM (1980)** Uncertainty of decay heat calculations originating from errors in the nuclear data and the yields of individual fission products, Nuclear Science and Engineering, Vol. 55, N. 1, pp. 79-99, 1980
- [10] **A. TOBIAS (1982)** FISP6 – An enhanced code for the evaluation of fission product inventories and decay heat, TPRD/B/0097/N82, 1982
- [11] **M.MESSAOUDI & al. (1993)** Extension of FAKIR KAHINA, a computer code of Kinsfolk Actinides Heat Irradiation Neutron and Activity, Regional Meeting : Nuclear Energy in Central Europe Present and Perspectives, Portorož, Slovénie, June 13-16, 1993
- [12] **J. REBAH (1998)** Incertitudes sur la puissance résiduelle dues aux incertitudes sur les données des produits de fission, thèse de doctorat de l'université Paris Sud XI, Orsay, France, 1998
- [13] **A. TSILANIZARA & al. (2000)** DARWIN : an evolution code system for a large range of applications, Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 1, pp. 845-849, March 2000
- [14] **F. GAUDIER (2010)** URANIE : The CEA/DEN Uncertainty and Sensitivity platform, Procedia Social and Behavioral Sciences, Sixth International Conference on Sensitivity Analysis of Model Output, Milan, Italy, July 19-22, 2010, Vol. 2, N. 6, pp. 7579-7782

## REFERENCES

- [15] **M. COSTE-DELCLAUX (2009)** GALILEE : A nuclear data processing system for transport, depletion and shielding codes, WONDER 2009, 2<sup>nd</sup> International Workshop on Nuclear Data Evaluation for Reactor applications, CEA Cadarache, France, September 29 – October 2, 2009
- [16] **N. GARCIA-HERRANZ & al. (2008)** Propagation of statistical and nuclear data uncertainties in Monte-Carlo burn-up calculations, *Annals of Nuclear Energy*, Vol. 35, N. 4, pp. 714-730, April 2008
- [17] **J.C. JABOULAY & S. BOURGANEL (2012)** Analysis of MERCI decay heat measurement for PWR UO<sub>2</sub> fuel rod, *Nuclear Technology*, Vol. 177, N. 1, pp. 73-82, January 2012
- [18] <http://root.cern.ch/drupal/>
- [19] **J. KATAKURA (1991)** Analysis of uncertainties in summation calculations of decay heat using JNDC FP nuclear data library, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 29, N. 1, pp. 11-23, January 1992
- [20] **YOSHIDA (1999)** Possible origin of the gamma-ray discrepancy in the summation calculations of fission product decay heat, *Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, Bologne, Italy, May 19-24, 1997, pp. 829-831
- [21] **L. SCHWARTZ (1959)** Sur l'impossibilité de la multiplication des distributions, *Comptes-Rendus de l'académie des sciences de Paris*, Vol. 239, pp. 847-848, 1959
- [22] **R. MILLS (1995)** Fission product yield evaluation, thèse de doctorat de l'université de Birmingham, 1995
- [23] **R. MILLS (2011)** Development of fission product yields covariance matrices, jefdoc-1410, JEFF Meeting, NEA, Issy-les-Moulineaux, Paris, November – December 2011
- [24] **R.A. FORREST, J. KOPECKY, J.-Ch. SUBLET (2005)** The European Activation File: EAF-2005 cross section library, UKAEA FUS 515, EURATOM/UKAEA Fusion, January 2005
- [25] **M. HERMAN & al. (2011)** COMMARA-2.0 Neutron cross section covariance library, BNL-94830-2011, Los Alamos National Laboratory, March 2011
- [26] **A. TSILANIZARA, N. GILARDI, C. JOUANNE, J.M. MARTINEZ, T.D. HUYNH, C.M. DIOP**, publication à paraître

[27] **A. BAIL & al. (2011)** Isotopic yield measurement in the heavy mass region for  $^{239}\text{Pu}$  thermal neutron induced fission, Physical Review C, Vol. 84, 034605

## PARTIE IV

[1] **J. REBAH (1998)** Incertitudes sur la puissance résiduelle dues aux incertitudes sur les données des produits de fission, thèse de doctorat de l'université Paris Sud XI, Orsay, France, 1998

[2] **A. D'ANGELO & al. (1990)** Analysis of Sample and Fuel Pin Irradiation in PHENIX for Basic Nuclear Data Validation, Nuclear Science and Engineering, Vol. 105, pp. 244, 1990

[3] **J. TOMMASI & G. NOGUERE (2008)** Analysis of the PROFIL and PROFIL-2 sample irradiation experiments in PHENIX for JEFF3.1 nuclear data validation, Nuclear Science and Engineering, Vol. 160, N. 2, pp. 232-241, October 2008

[4] **L. MERCATALI, G. PALMIOTTI, M. SALVATORES (2003)** Analysis of PROFIL-1 Irradiation Experiment and Related Uncertainty Assessment, Transaction of the American Nuclear Society Annual Meeting, San Diego, California, June 2003, Vol. 88, pp. 509

[5] **J. TOMMASI, J.F LEBRAT, P. ARCHIER, M. DE MIJOLLA, J-M. RUGGIERI (2009)** Rapport de qualification intermédiaire ERANOS 2.2 / JEFF 3.1.1, RT DEN 2009

[6] ANSI/ANS-5.1-1973 : Decay Heat Power in Light Water Reactors

[7] **A.L. NICHOLS (2002)** Workshop on Nuclear Reaction Data and Nuclear Reactors : Physics, Design and safety, Trieste, Italy, February 25 – March 28, 2002

[8] **M. LOTT & al. (1973)** Puissance résiduelle totale émise par les produits de fission thermiques de l' $^{235}\text{U}$ , Journal of Nuclear Energy, Vol. 27, N.9, pp. 597-605, September 1973

[9] **J.K. DICKENS & al. (1980)** Fission-product energy release for times following thermal neutron fission of  $^{235}\text{U}$  between 2 and 14 000 s, Nuclear Science and Engineering, Vol. 74, pp 106-129, 1980

[10] **P.I. JOHANSSON (1987)** Integral determination of the beta and gamma heat in thermal neutron induce fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ , and of the gamma heat in fast fission of  $^{238}\text{U}$ , Proceedings of a specialists' meeting on data for decay heat predictions, Studsvik, Suède, September 7-10, 1987, pp. 211-223

## REFERENCES

[11] **H.V. NGUYEN & al. (1997)** Decay heat measurements following neutron fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ , Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy, May 19-24, 1997, pp. 835-838

## DISCUSSION & PERSPECTIVES

[1] **M. PUSA & J. LEPPANEN (2010)** Computing the Matrix Exponential in Burnup Calculations, Nuclear Science and Engineering, Vol. 164, N. 2, pp. 140-150, February 2010

[2] **R. MILLS (2012)** Proposal for a WPEC subgroup on fission Yield Evaluation, jefdoc-1444, JEFF Meeting, NEA, Paris, April 2012

[3] **G. KESSEDJIAN (2011)** Fission yield measurements at ILL/Lohengrin, JEFF-GEDEPEON Workshop on Nuclear Data Measurements, Issy-les-Moulineaux, France, November 2011

[4] **R.E. SCHENTER & F. SCHMITTROTH (1975)** Proceedings of the Conference Nuclear Cross Sections and Technology, Washington, D.C., USA, March 3-7, 1975, Vol. 1, pp. 21-28

[5] **G. RUDSTAM (1980)** Uncertainty of decay heat calculations originating from errors in the nuclear data and the yields of individual fission products, Nuclear Science and Engineering, Vol. 55, N. 1, pp 79-99, 1980

[6] **J. KATAKURA (1991)** Analysis of uncertainties in summation calculations of decay heat using JNDC FP nuclear data library, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 29, N. 1, pp. 11-23, January 1992

[7] **C.J. DIEZ, O. CABELLOS, J.S. MARTINEZ (2011)** Propagation of nuclear data uncertainties in fuel cycle calculations using Monte-Carlo technique, Proceedings of the International Conference on Mathematics and Computational methods applied to nuclear science and engineering, Rio de Janeiro, RJ, Brazil, May 8-12, 2011

## ANNEXES



**ANNEXE 1 :****Développement du calcul de la variance du résultat en supposant un développement en série de Taylor jusqu'à l'ordre 2**

Soit un résultat dépendant de plusieurs paramètres :

$$X = X(p_1, \dots, p_i, \dots, p_n)$$

Développons ce résultat à l'ordre 2 du développement en série de Taylor :

$$X(p_i) = X|_{p^0} + \sum_i \frac{\partial X}{\partial p_i} \Big|_{p^0} \delta p_i + \frac{1}{2!} \left[ \sum_i \frac{\partial^2 X}{\partial p_i^2} \Big|_{p^0} \delta p_i^2 + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{\partial^2 X}{\partial p_i \partial p_j} \Big|_{p^0} \delta p_i \delta p_j \right]$$

Calculons l'espérance mathématique :

$$E(X) = \int \left\{ X|_{p^0} + \sum_i \frac{\partial X}{\partial p_i} \Big|_{p^0} \delta p_i + \frac{1}{2!} \left[ \sum_i \frac{\partial^2 X}{\partial p_i^2} \Big|_{p^0} \delta p_i^2 + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{\partial^2 X}{\partial p_i \partial p_j} \Big|_{p^0} \delta p_i \delta p_j \right] \right\} p(X) dX$$

$$E(X) = X|_{p^0} + \frac{1}{2!} \left[ \sum_i \frac{\partial^2 X}{\partial p_i^2} \Big|_{p^0} VAR(p_i) + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{\partial^2 X}{\partial p_i \partial p_j} \Big|_{p^0} COV(p_i, p_j) \right]$$

Maintenant calculons la variance :

$$VAR(X) = E((X - E(X))^2)$$

Le résultat est le suivant. Il faudra revoir comment noter la covariance de termes élevés au carré.

$$\begin{aligned}
& VAR(X) = \\
& 'S(X/p)COV(p)S(X/p) \\
& + \frac{1}{2} \left\{ \sum_i \frac{dX}{dp_i} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_i^2} \Big|_{p^0} \mu_3(p_i) + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{dX}{dp_i} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_j^2} \Big|_{p^0} \delta p_i \delta p_j^2 + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{dX}{dp_i} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_i dp_j} \Big|_{p^0} \delta p_i^2 \delta p_j \right. \\
& \left. \sum_i \sum_{j \neq i} \sum_{k \neq j \neq i} \frac{dX}{dp_i} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_j dp_k} \Big|_{p^0} \delta p_i \delta p_j dp_k \right\} \\
& + \frac{1}{4} \left\{ \sum_i \frac{d^2 X}{dp_i^2} \Big|_{p^0}^2 \left( \mu_4(p_i) - \text{var}(p_i)^2 \right) + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{d^2 X}{dp_i^2} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_j^2} \Big|_{p^0} \left( \delta p_i^2 \delta p_j^2 - \text{var}(p_i) \text{var}(p_j) \right) \right. \\
& + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{d^2 X}{dp_i dp_j} \Big|_{p^0}^2 \left( \delta p_i^2 \delta p_j^2 - \text{cov}(p_i, p_j)^2 \right) \\
& + \sum_i \sum_{j \neq i} \sum_{k \neq j \neq i} \frac{d^2 X}{dp_i dp_j} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_i dp_k} \Big|_{p^0} \left( \delta p_i^2 \delta p_j \delta p_k - \text{cov}(p_i, p_j) \text{cov}(p_i, p_k) \right) \\
& + \sum_i \sum_{j \neq i} \sum_{k \neq j \neq i} \sum_{l \neq k \neq j \neq i} \frac{d^2 X}{dp_i dp_j} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_k dp_l} \Big|_{p^0} \left( \delta p_i \delta p_j \delta p_k \delta p_l - \text{cov}(p_i, p_j) \text{cov}(p_k, p_l) \right) \\
& + \sum_i \sum_{j \neq i} \frac{d^2 X}{dp_i^2} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_i dp_j} \Big|_{p^0} \left( \delta p_i^3 \delta p_j - \text{var}(p_i) \text{cov}(p_i, p_j) \right) \\
& + \sum_i \sum_{j \neq i} \sum_{k \neq j \neq i} \frac{d^2 X}{dp_i^2} \Big|_{p^0} \frac{d^2 X}{dp_j dp_k} \Big|_{p^0} \left( \delta p_i^2 \delta p_j \delta p_k - \text{var}(p_i) \text{cov}(p_j, p_k) \right) \left. \right\}
\end{aligned}$$

La variance est la somme de termes contenant des tenseurs d'ordre 2, 3 et 4.

On peut simplifier cette expression en supposant que les variables sont gaussiennes et indépendantes.

L'hypothèse de normalité implique que les moments d'ordre 3 sont nuls et que le moment d'ordre 4 est égal à 3 fois le moment d'ordre 2.

L'hypothèse d'indépendance implique que les termes croisés apparaissant dans les intégrales peuvent être calculés chacun dans des intégrales séparées. Ceci implique que tous les termes de covariance sont nuls.

Nous obtenons la variance suivante :

$$VAR(X) =$$

$$S(X/p)COV(p)S(X/p) + \frac{1}{2} \left\{ \sum_i \left. \frac{d^2 X}{dp_i^2} \right|_{p^0}^2 \text{var}(p_i)^2 + \sum_i \sum_{j=i+1} \left. \frac{d^2 X}{dp_i dp_j} \right|_{p^0}^2 \text{var}(p_i) \text{var}(p_j) \right\}$$

## ANNEXE 2 :

### Obtention des formules de sensibilité pour un calcul adjoint

Comme il a déjà été vu précédemment, les équations d'évolution ont cette forme :

$$\frac{d}{dt} N = M N$$

$$N(0) = N_0$$

La solution à cette équation différentielle peut être écrite de cette façon :

$$N(t) = e^{M t} N(0)$$

Il faut maintenant exprimer l'incertitude de  $N_k$  à la fin de l'irradiation en fonction des incertitudes sur les concentrations initiales et sur les paramètres. Pour cela nous allons utiliser le formalisme des multiplicateurs de Lagrange. Nous contournons l'objectif premier de ce formalisme qui est l'optimisation, pour l'obtention de l'expression d'une variable qui va nous affranchir du calcul des incertitudes des concentrations des isotopes tout le long de l'évolution.

Soit une fonction :

$$N(p, N_0, t) = e^{M t} N_0$$

Avec  $p$  les paramètres de l'évolution se trouvant dans la matrice d'évolution  $M$ .

Et une contrainte :

$$\frac{d}{dt} N(p, N_0, t) = M N(p, N_0, t)$$

Il faut construire la fonctionnelle suivante :

$$T = \langle u_k | N(T_{irrad}) \rangle - \int_0^{T_{irrad}} \left\langle N^*(t) \left| \frac{d}{dt} N(t) - M N(t) \right. \right\rangle dt$$

La deuxième partie du terme de droite de l'équation est nulle. Ainsi, T est égale à la valeur en fin d'irradiation de la k<sup>ième</sup> composante du vecteur concentration. Cependant, n multiplicateurs de Lagrange, sous la forme du vecteur nommé N\*, viennent d'être introduits (où n est le nombre de noyaux).

Ecrivons maintenant la différentielle de cette fonctionnelle, soit une petite variation de la k<sup>ième</sup> composante du vecteur concentration.

$$\delta T = \langle u_k | \delta N(T_{irrad}) \rangle - \sum_p \left[ \int_0^{T_{irrad}} \left\langle N^*(t) \left| \frac{d}{dt} \delta N(t) - \delta M_p N(t) - M_p \delta N(t) \right. \right\rangle dt \right]$$

M<sub>p</sub> est la restriction de M aux seuls termes en facteur du paramètre p, les autres termes étant nuls.

Il faut maintenant essayer de trouver une expression de N\* qui permette de s'affranchir des termes δN(T<sub>irrad</sub>) et δN(t) et ne garder que les termes δN(0) et δMp.

$$\delta T = \langle u_k | \delta N(T_{irrad}) \rangle - \sum_p \left[ \int_0^{T_{irrad}} {}^t N^*(t) \frac{d}{dt} \delta N(t) dt - \int_0^{T_{irrad}} {}^t N^*(t) \delta M_p N(t) dt - \int_0^{T_{irrad}} {}^t N^*(t) M_p \delta N(t) dt \right]$$

En faisant une intégration par parties, le deuxième terme de la partie droite de l'équation devient :

$$\int_0^{T_{irrad}} {}^t N^*(t) \frac{d}{dt} \delta N(t) dt = \left[ {}^t N^*(t) \delta N(t) \right]_0^{T_{irrad}} - \int_0^{T_{irrad}} \frac{dN^*}{dt}(t) \delta N(t) dt$$

Ce qui revient à écrire :

$$\delta T = \langle u_k | \delta N(T_{irrad}) \rangle - {}^t N^*(T_{irrad}) \delta N(T_{irrad}) + {}^t N^*(0) \delta N(0) \\ + \sum_p \left[ \int_0^{T_{irrad}} \left( \frac{dN^*}{dt}(t) + {}^t N^*(t) M_p \right) \delta N(t) dt + \int_0^{T_{irrad}} {}^t N^*(t) \delta M_p N(t) dt \right]$$

Ou encore :

$$\delta T = \langle u_k | \delta N(T_{irrad}) \rangle - {}^t N^*(T_{irrad}) \delta N(T_{irrad}) + {}^t N^*(0) \delta N(0) \\ + \int_0^{T_{irrad}} \left\langle \frac{dN^*}{dt}(t) + M^* N^*(t) \middle| \delta N(t) \right\rangle dt + \sum_p \left[ \int_0^{T_{irrad}} {}^t N^*(t) \delta M_p N(t) dt \right]$$

Avec  $M^* = {}^t M$ .

A partir de cette équation, il apparaît que pour s'affranchir des termes  $\delta N(T_{irrad})$  et  $\delta N(t)$  il est possible de définir  $N^*$  de cette façon :

$$\frac{d}{dt} N^* = -M^* N^* \\ N^*(T_{irrad}) = u_k$$

D'après la définition initiale de la fonctionnelle :

$$T = N_k(T_{irrad}) \Rightarrow \delta T = \delta N_k(T_{irrad})$$

L'équation finale est :

$$\delta N_k(T_{irrad}) = \langle N^*(0) | \delta N(0) \rangle + \sum_p \int_0^{T_{irrad}} \langle N^*(t) | \delta M_p N(t) \rangle dt$$

Les sensibilités relatives par rapport à la concentration initiale du noyau j ou du paramètre p peuvent maintenant être écrites simplement :

$$S(N_k(T_{irrad}) / N_j(0)) = \frac{\partial N_k(T_{irrad})}{\partial N_j(0)} \frac{N_j(0)}{N_k(T_{irrad})} = \frac{N_j^*(0)N_j(0)}{N_k(T_{irrad})}$$

$$S(N_k(T_{irrad}) / p) = \frac{\partial N_k(T_{irrad})}{\partial p} \frac{p}{N_k(T_{irrad})} = \frac{\int_0^{T_{irrad}} \langle N^*(t) | M_p N(t) \rangle dt}{N_k(T_{irrad})}$$

Pour calculer ces sensibilités, il va falloir résoudre le système d'équations des concentrations directes et les n systèmes d'équations des concentrations adjointes (n systèmes car un système par  $u_k$ ). De plus, il va falloir tabuler ces valeurs en fonction du temps afin de garder les valeurs nécessaires au calcul de l'intégrale dans l'expression de la sensibilité aux paramètres.

**ANNEXE 3 :**

**Comparaison du calcul des concentrations entre CYRUS et  
DARWIN**



## ANNEXES

Noyau	Conc.	Ecart	<sup>21</sup> Br	2,04.10 <sup>10</sup>	-0,34	<sup>98</sup> Zr	5,28.10 <sup>13</sup>	-0,57	<sup>105</sup> Tc	7,49.10 <sup>14</sup>	-0,70
<sup>235</sup> U	3,36.10 <sup>19</sup>	-0,60	<sup>91</sup> Kr	3,62.10 <sup>12</sup>	-0,47	<sup>98</sup> Nb	4,95.10 <sup>12</sup>	-0,57	<sup>105</sup> Ru	2,76.10 <sup>16</sup>	-0,70
<sup>238</sup> U	1,67.10 <sup>22</sup>	0,04	<sup>91</sup> Rb	4,68.10 <sup>13</sup>	-0,65	<sup>98</sup> Mo	1,14.10 <sup>20</sup>	-2,02	<sup>105m</sup> Rh	1,96.10 <sup>13</sup>	-0,72
<sup>239</sup> Pu	3,06.10 <sup>21</sup>	0,03	<sup>91</sup> Sr	2,93.10 <sup>16</sup>	-0,75	<sup>99</sup> Y	9,90.10 <sup>11</sup>	-0,43	<sup>105</sup> Rh	2,20.10 <sup>17</sup>	-0,66
<sup>240</sup> Pu	1,48.10 <sup>21</sup>	-0,09	<sup>91m</sup> Y	1,48.10 <sup>15</sup>	-0,97	<sup>99</sup> Zr	3,65.10 <sup>12</sup>	-0,51	<sup>105</sup> Pd	9,69.10 <sup>19</sup>	-0,83
<sup>241</sup> Pu	1,81.10 <sup>20</sup>	0,00	<sup>91</sup> Y	4,33.10 <sup>18</sup>	-0,62	<sup>99m</sup> Nb	9,97.10 <sup>13</sup>	-0,52	<sup>106</sup> Nb	4,57.10 <sup>10</sup>	-0,92
<sup>84m</sup> As	1,69.10 <sup>10</sup>	-0,37	<sup>91</sup> Zr	5,03.10 <sup>19</sup>	0,31	<sup>99</sup> Nb	1,80.10 <sup>13</sup>	-0,55	<sup>106</sup> Mo	6,08.10 <sup>12</sup>	-0,76
<sup>84</sup> As	1,04.10 <sup>11</sup>	-0,38	<sup>92</sup> Br	2,72.10 <sup>09</sup>	-0,28	<sup>99</sup> Mo	4,48.10 <sup>17</sup>	-0,55	<sup>106</sup> Tc	4,48.10 <sup>13</sup>	-0,71
<sup>84</sup> Se	2,79.10 <sup>13</sup>	-0,53	<sup>92</sup> Kr	4,56.10 <sup>11</sup>	-0,86	<sup>99m</sup> Tc	3,66.10 <sup>16</sup>	-0,54	<sup>106</sup> Ru	3,71.10 <sup>19</sup>	0,13
<sup>84</sup> Br	2,97.10 <sup>14</sup>	-0,54	<sup>92</sup> Rb	3,56.10 <sup>12</sup>	-0,74	<sup>99</sup> Tc	1,12.10 <sup>20</sup>	-0,39	<sup>106</sup> Rh	3,46.10 <sup>13</sup>	0,09
<sup>84</sup> Kr	1,01.10 <sup>19</sup>	-4,77	<sup>92</sup> Sr	9,67.10 <sup>15</sup>	-0,78	<sup>99</sup> Ru	4,44.10 <sup>15</sup>	4,56	<sup>106</sup> Pd	5,78.10 <sup>19</sup>	1,48
<sup>85</sup> As	6,31.10 <sup>10</sup>	-0,32	<sup>92</sup> Y	1,27.10 <sup>16</sup>	-0,86	<sup>100m</sup> Y	1,19.10 <sup>11</sup>	-0,57	<sup>107</sup> Mo	7,85.10 <sup>11</sup>	-1,12
<sup>85</sup> Se	4,63.10 <sup>12</sup>	-0,52	<sup>92</sup> Zr	6,44.10 <sup>19</sup>	-0,89	<sup>100</sup> Y	1,01.10 <sup>11</sup>	-0,56	<sup>107</sup> Tc	1,81.10 <sup>13</sup>	-0,86
<sup>85</sup> Br	3,36.10 <sup>13</sup>	-0,60	<sup>93</sup> Kr	1,11.10 <sup>11</sup>	-0,40	<sup>100</sup> Zr	1,15.10 <sup>13</sup>	-0,53	<sup>107</sup> Ru	2,22.10 <sup>14</sup>	-2,09
<sup>85m</sup> Kr	3,11.10 <sup>15</sup>	-2,25	<sup>93</sup> Rb	4,40.10 <sup>12</sup>	-0,52	<sup>100m</sup> Nb	1,04.10 <sup>12</sup>	-0,71	<sup>107</sup> Rh	1,29.10 <sup>15</sup>	-2,09
<sup>85</sup> Kr	2,56.10 <sup>18</sup>	-1,33	<sup>93</sup> Sr	5,49.10 <sup>14</sup>	-0,60	<sup>100</sup> Nb	2,55.10 <sup>12</sup>	-0,54	<sup>107</sup> Pd	5,62.10 <sup>19</sup>	-3,06
<sup>85</sup> Rb	9,84.10 <sup>18</sup>	-1,25	<sup>93m</sup> Y	2,76.10 <sup>11</sup>	-0,63	<sup>100</sup> Mo	1,33.10 <sup>20</sup>	-0,46	<sup>107</sup> Ag	8,71.10 <sup>12</sup>	0,47
<sup>86</sup> As	9,79.10 <sup>09</sup>	-0,35	<sup>93</sup> Y	4,64.10 <sup>16</sup>	-0,60	<sup>100</sup> Tc	4,09.10 <sup>12</sup>	-0,38	<sup>108</sup> Mo	5,33.10 <sup>10</sup>	-1,55
<sup>86</sup> Se	2,16.10 <sup>12</sup>	-0,85	<sup>93</sup> Zr	8,18.10 <sup>19</sup>	0,64	<sup>100</sup> Ru	8,03.10 <sup>18</sup>	1,07	<sup>108</sup> Tc	1,97.10 <sup>12</sup>	-1,01
<sup>86</sup> Br	1,33.10 <sup>13</sup>	-0,87	<sup>93m</sup> Nb	4,86.10 <sup>13</sup>	2,11	<sup>101</sup> Y	4,31.10 <sup>10</sup>	-0,56	<sup>108</sup> Ru	1,72.10 <sup>14</sup>	-0,96
<sup>86</sup> Kr	1,71.10 <sup>19</sup>	-0,72	<sup>93</sup> Nb	5,24.10 <sup>12</sup>	1,76	<sup>101</sup> Zr	2,39.10 <sup>12</sup>	-0,64	<sup>108</sup> Rh	1,06.10 <sup>13</sup>	-0,96
<sup>86m</sup> Rb	6,59.10 <sup>10</sup>	-1,57	<sup>94</sup> Rb	1,08.10 <sup>12</sup>	-0,44	<sup>101</sup> Nb	1,39.10 <sup>13</sup>	-0,66	<sup>108</sup> Pd	4,67.10 <sup>19</sup>	-2,35
<sup>86</sup> Rb	1,35.10 <sup>16</sup>	-1,19	<sup>94</sup> Sr	9,14.10 <sup>13</sup>	-0,56	<sup>101</sup> Mo	1,83.10 <sup>15</sup>	-0,67	<sup>109</sup> Tc	9,89.10 <sup>10</sup>	-1,37
<sup>86</sup> Sr	2,50.10 <sup>17</sup>	-0,92	<sup>94</sup> Y	1,50.10 <sup>15</sup>	-0,59	<sup>101</sup> Tc	1,78.10 <sup>15</sup>	-0,66	<sup>109</sup> Ru	1,43.10 <sup>13</sup>	-0,87
<sup>87</sup> Se	4,50.10 <sup>11</sup>	-0,38	<sup>94</sup> Zr	8,67.10 <sup>19</sup>	-1,51	<sup>101</sup> Ru	1,23.10 <sup>20</sup>	-0,59	<sup>109</sup> Rh	3,50.10 <sup>13</sup>	0,54
<sup>87</sup> Br	1,56.10 <sup>13</sup>	-0,63	<sup>95</sup> Rb	6,99.10 <sup>10</sup>	-0,46	<sup>102</sup> Zr	1,67.10 <sup>12</sup>	-0,61	<sup>109m</sup> Pd	6,17.10 <sup>13</sup>	0,12
<sup>87</sup> Kr	1,57.10 <sup>15</sup>	-0,74	<sup>95</sup> Sr	2,58.10 <sup>13</sup>	-0,99	<sup>102m</sup> Nb	2,43.10 <sup>12</sup>	-0,61	<sup>109</sup> Pd	2,33.10 <sup>16</sup>	0,13
<sup>87</sup> Rb	2,24.10 <sup>19</sup>	-0,30	<sup>95</sup> Y	9,01.10 <sup>14</sup>	-0,95	<sup>102</sup> Nb	1,48.10 <sup>12</sup>	-0,61	<sup>109m</sup> Ag	1,88.10 <sup>13</sup>	-3,80
<sup>87m</sup> Sr	7,73.10 <sup>11</sup>	-1,53	<sup>95</sup> Zr	8,28.10 <sup>18</sup>	-1,29	<sup>102</sup> Mo	1,39.10 <sup>15</sup>	-0,65	<sup>109</sup> Ag	2,91.10 <sup>19</sup>	8,84
<sup>87</sup> Sr	2,05.10 <sup>15</sup>	-0,12	<sup>95m</sup> Nb	5,25.10 <sup>15</sup>	-1,24	<sup>102</sup> Tc	1,09.10 <sup>13</sup>	-0,65	<sup>110</sup> Tc	2,21.10 <sup>10</sup>	-1,26
<sup>88</sup> Se	6,62.10 <sup>10</sup>	-0,34	<sup>95</sup> Nb	4,53.10 <sup>18</sup>	-1,24	<sup>102</sup> Ru	1,41.10 <sup>20</sup>	-0,59	<sup>110</sup> Ru	2,36.10 <sup>12</sup>	-0,82
<sup>88</sup> Br	4,50.10 <sup>12</sup>	-0,51	<sup>95</sup> Mo	8,22.10 <sup>19</sup>	2,38	<sup>103</sup> Zr	2,35.10 <sup>11</sup>	-0,60	<sup>110</sup> Rh	6,29.10 <sup>12</sup>	-1,09
<sup>88</sup> Kr	4,68.10 <sup>15</sup>	-0,64	<sup>96</sup> Sr	8,88.10 <sup>11</sup>	-0,03	<sup>103</sup> Nb	1,96.10 <sup>12</sup>	-0,57	<sup>110</sup> Pd	1,40.10 <sup>19</sup>	-1,08
<sup>88</sup> Rb	4,99.10 <sup>14</sup>	-1,01	<sup>96m</sup> Y	4,10.10 <sup>12</sup>	-0,74	<sup>103</sup> Mo	1,36.10 <sup>14</sup>	-0,61	<sup>111</sup> Tc	4,28.10 <sup>09</sup>	-0,52
<sup>88</sup> Sr	3,03.10 <sup>19</sup>	-0,61	<sup>96</sup> Y	5,58.10 <sup>12</sup>	-0,17	<sup>103</sup> Tc	1,11.10 <sup>14</sup>	-0,61	<sup>111</sup> Ru	2,34.10 <sup>11</sup>	-0,71
<sup>89</sup> Se	5,38.10 <sup>09</sup>	-0,22	<sup>96</sup> Zr	1,01.10 <sup>20</sup>	0,03	<sup>103</sup> Ru	7,29.10 <sup>18</sup>	-0,13	<sup>111</sup> Rh	1,47.10 <sup>12</sup>	-1,27
<sup>89</sup> Br	9,45.10 <sup>11</sup>	-0,38	<sup>97</sup> Rb	2,53.10 <sup>09</sup>	-0,38	<sup>103m</sup> Rh	7,44.10 <sup>15</sup>	-0,12	<sup>111m</sup> Pd	1,67.10 <sup>13</sup>	-8,82
<sup>89</sup> Kr	9,94.10 <sup>13</sup>	-0,58	<sup>97</sup> Sr	1,52.10 <sup>11</sup>	-0,54	<sup>103</sup> Rh	1,18.10 <sup>20</sup>	0,01	<sup>111</sup> Pd	1,79.10 <sup>14</sup>	-1,33
<sup>89</sup> Rb	5,37.10 <sup>14</sup>	-0,62	<sup>97m</sup> Y	2,86.10 <sup>10</sup>	-0,63	<sup>104m</sup> Nb	2,88.10 <sup>11</sup>	-0,62	<sup>111m</sup> Ag	8,21.10 <sup>12</sup>	-1,48
<sup>89</sup> Sr	2,57.10 <sup>18</sup>	-0,65	<sup>97m</sup> Y	9,97.10 <sup>11</sup>	-0,62	<sup>104</sup> Nb	1,77.10 <sup>12</sup>	-0,63	<sup>111</sup> Ag	8,18.10 <sup>16</sup>	-1,29
<sup>89</sup> Y	3,49.10 <sup>19</sup>	-0,91	<sup>97</sup> Y	1,77.10 <sup>12</sup>	-0,57	<sup>104</sup> Mo	1,13.10 <sup>14</sup>	-0,57	<sup>111</sup> Cd	7,24.10 <sup>18</sup>	-1,35
<sup>90</sup> Br	1,61.10 <sup>11</sup>	-0,48	<sup>97</sup> Zr	9,69.10 <sup>16</sup>	-1,34	<sup>104</sup> Tc	2,22.10 <sup>15</sup>	-0,59	<sup>112</sup> Tc	8,85.10 <sup>08</sup>	-1,30
<sup>90</sup> Kr	1,67.10 <sup>13</sup>	-0,64	<sup>97m</sup> Nb	8,06.10 <sup>13</sup>	-1,34	<sup>104</sup> Ru	1,28.10 <sup>20</sup>	-0,89	<sup>112</sup> Ru	5,61.10 <sup>10</sup>	-1,60
<sup>90m</sup> Rb	5,09.10 <sup>13</sup>	-0,93	<sup>97</sup> Nb	6,98.10 <sup>15</sup>	-1,34	<sup>104m</sup> Rh	6,36.10 <sup>12</sup>	0,00	<sup>112m</sup> Rh	5,34.10 <sup>10</sup>	-3,53
<sup>90</sup> Rb	7,37.10 <sup>13</sup>	-0,65	<sup>97</sup> Mo	1,00.10 <sup>20</sup>	-0,92	<sup>104</sup> Rh	1,31.10 <sup>13</sup>	0,00	<sup>112</sup> Rh	8,38.10 <sup>10</sup>	-1,98
<sup>90</sup> Sr	4,18.10 <sup>19</sup>	-0,51	<sup>98</sup> Sr	1,00.10 <sup>11</sup>	-0,51	<sup>104</sup> Pd	9,11.10 <sup>18</sup>	1,54	<sup>112</sup> Pd	3,56.10 <sup>15</sup>	-2,38
<sup>90</sup> Y	1,12.10 <sup>16</sup>	-0,64	<sup>98m</sup> Y	1,48.10 <sup>12</sup>	-0,50	<sup>105</sup> Nb	7,59.10 <sup>11</sup>	-0,89	<sup>112</sup> Ag	5,49.10 <sup>14</sup>	-2,86
<sup>90</sup> Zr	1,49.10 <sup>18</sup>	-0,57	<sup>98</sup> Y	1,82.10 <sup>11</sup>	-0,50	<sup>105</sup> Mo	4,51.10 <sup>13</sup>	-0,67	<sup>112</sup> Cd	3,74.10 <sup>18</sup>	0,45

Tableau : Ecart de concentration entre DARWIN et CYRUS à la fin de l'irradiation pour un assemblage de cœur interne PHENIX irradié 993 jours (gris : noyaux lourds et noyaux stables, or : écart supérieur à 1 %).

## ANNEXES

Nuclid	Conc.	Ecart	Nuclid	Conc.	Ecart	Nuclid	Conc.	Ecart	Nuclid	Conc.	Ecart	Nuclid	Conc.	Ecart
<sup>235</sup> U	3,36.10 <sup>19</sup>	-0,60	<sup>130</sup> Te	5,44.10 <sup>19</sup>	-0,20	<sup>136</sup> Ba	6,30.10 <sup>18</sup>	-0,77	<sup>146</sup> La	1,60.10 <sup>12</sup>	-0,57	<sup>146</sup> La	1,60.10 <sup>12</sup>	-0,57
<sup>238</sup> U	1,67.10 <sup>22</sup>	0,04	<sup>130m</sup> I	1,09.10 <sup>13</sup>	-0,73	<sup>137</sup> I	1,88.10 <sup>13</sup>	-0,57	<sup>146</sup> Ce	6,63.10 <sup>14</sup>	-0,71	<sup>146</sup> Ce	6,63.10 <sup>14</sup>	-0,71
<sup>239</sup> Pu	3,06.10 <sup>21</sup>	0,03	<sup>130</sup> I	1,43.10 <sup>15</sup>	-0,79	<sup>137</sup> Xe	4,19.10 <sup>14</sup>	-0,61	<sup>146</sup> Pr	1,21.10 <sup>15</sup>	-0,73	<sup>146</sup> Pr	1,21.10 <sup>15</sup>	-0,73
<sup>240</sup> Pu	1,48.10 <sup>21</sup>	-0,09	<sup>130</sup> Xe	1,12.10 <sup>18</sup>	0,29	<sup>137</sup> Cs	1,25.10 <sup>20</sup>	-0,29	<sup>146</sup> Nd	5,68.10 <sup>19</sup>	-0,58	<sup>146</sup> Nd	5,68.10 <sup>19</sup>	-0,58
<sup>241</sup> Pu	1,81.10 <sup>20</sup>	0,00	<sup>131m</sup> Sn	8,98.10 <sup>12</sup>	-0,55	<sup>137m</sup> Ba	1,94.10 <sup>13</sup>	-0,34	<sup>147</sup> La	1,02.10 <sup>12</sup>	-0,56	<sup>147</sup> La	1,02.10 <sup>12</sup>	-0,56
<sup>125m</sup> In	2,49.10 <sup>10</sup>	-0,50	<sup>131</sup> Sn	3,50.10 <sup>12</sup>	-0,53	<sup>137</sup> Ba	4,22.10 <sup>18</sup>	0,09	<sup>147</sup> Ce	3,36.10 <sup>13</sup>	-0,64	<sup>147</sup> Ce	3,36.10 <sup>13</sup>	-0,64
<sup>125</sup> In	2,37.10 <sup>10</sup>	-0,51	<sup>131</sup> Sb	1,27.10 <sup>15</sup>	-0,54	<sup>138</sup> I	1,89.10 <sup>12</sup>	-0,69	<sup>147</sup> Pr	5,19.10 <sup>14</sup>	-0,72	<sup>147</sup> Pr	5,19.10 <sup>14</sup>	-0,72
<sup>125m</sup> Sn	9,16.10 <sup>12</sup>	-1,29	<sup>131m</sup> Te	3,06.10 <sup>16</sup>	-0,81	<sup>138</sup> Xe	1,27.10 <sup>15</sup>	-0,58	<sup>147</sup> Nd	6,35.10 <sup>17</sup>	-0,45	<sup>147</sup> Nd	6,35.10 <sup>17</sup>	-0,45
<sup>125</sup> Sn	1,43.10 <sup>16</sup>	-0,84	<sup>131</sup> Te	1,47.10 <sup>15</sup>	-0,84	<sup>138m</sup> Cs	3,85.10 <sup>13</sup>	-1,43	<sup>147</sup> Pm	2,57.10 <sup>19</sup>	-0,28	<sup>147</sup> Pm	2,57.10 <sup>19</sup>	-0,28
<sup>125</sup> Sb	1,66.10 <sup>18</sup>	-0,75	<sup>131</sup> I	8,43.10 <sup>17</sup>	-0,79	<sup>138</sup> Cs	3,63.10 <sup>15</sup>	-1,08	<sup>147</sup> Sm	9,78.10 <sup>18</sup>	-0,21	<sup>147</sup> Sm	9,78.10 <sup>18</sup>	-0,21
<sup>125m</sup> Te	2,19.10 <sup>16</sup>	0,01	<sup>131m</sup> Xe	5,63.10 <sup>16</sup>	-0,66	<sup>138</sup> Ba	1,21.10 <sup>20</sup>	-0,68	<sup>148</sup> La	1,23.10 <sup>11</sup>	-0,61	<sup>148</sup> La	1,23.10 <sup>11</sup>	-0,61
<sup>125</sup> Te	6,18.10 <sup>17</sup>	-0,60	<sup>131</sup> Xe	7,52.10 <sup>19</sup>	-0,57	<sup>139</sup> I	2,89.10 <sup>11</sup>	-0,65	<sup>148</sup> Ce	2,49.10 <sup>13</sup>	-0,55	<sup>148</sup> Ce	2,49.10 <sup>13</sup>	-0,55
<sup>126m</sup> In	8,71.10 <sup>09</sup>	-1,09	<sup>132</sup> Sn	3,88.10 <sup>12</sup>	-0,67	<sup>139</sup> Xe	3,72.10 <sup>13</sup>	-0,91	<sup>148m</sup> Pr	1,09.10 <sup>13</sup>	-1,23	<sup>148m</sup> Pr	1,09.10 <sup>13</sup>	-1,23
<sup>126</sup> In	8,42.10 <sup>09</sup>	-1,06	<sup>132m</sup> Sb	7,14.10 <sup>13</sup>	-0,58	<sup>139</sup> Cs	9,44.10 <sup>14</sup>	-0,86	<sup>148</sup> Pr	6,37.10 <sup>13</sup>	-0,57	<sup>148</sup> Pr	6,37.10 <sup>13</sup>	-0,57
<sup>126</sup> Sn	3,77.10 <sup>18</sup>	-0,51	<sup>132</sup> Sb	7,24.10 <sup>13</sup>	-0,60	<sup>139</sup> Ba	8,86.10 <sup>15</sup>	-0,99	<sup>148</sup> Nd	3,53.10 <sup>19</sup>	-0,83	<sup>148</sup> Nd	3,53.10 <sup>19</sup>	-0,83
<sup>126n</sup> Sb	3,83.10 <sup>10</sup>	-0,65	<sup>132</sup> Te	4,23.10 <sup>17</sup>	-0,62	<sup>139</sup> La	1,15.10 <sup>20</sup>	-0,39	<sup>148m</sup> Pm	2,15.10 <sup>17</sup>	-0,22	<sup>148m</sup> Pm	2,15.10 <sup>17</sup>	-0,22
<sup>126m</sup> Sb	6,12.10 <sup>12</sup>	-0,68	<sup>132m</sup> I	1,43.10 <sup>14</sup>	-1,30	<sup>140</sup> Xe	7,03.10 <sup>12</sup>	-0,58	<sup>148</sup> Pm	3,64.10 <sup>16</sup>	0,37	<sup>148</sup> Pm	3,64.10 <sup>16</sup>	0,37
<sup>126</sup> Sb	4,28.10 <sup>15</sup>	-0,37	<sup>132</sup> I	1,31.10 <sup>16</sup>	-0,67	<sup>140</sup> Cs	9,06.10 <sup>13</sup>	-0,56	<sup>148</sup> Sm	5,62.10 <sup>18</sup>	-0,09	<sup>148</sup> Sm	5,62.10 <sup>18</sup>	-0,09
<sup>126</sup> Te	5,15.10 <sup>17</sup>	0,68	<sup>132m</sup> Xe	1,91.10 <sup>06</sup>	-2,43	<sup>140</sup> Ba	1,88.10 <sup>18</sup>	-0,62	<sup>149</sup> La	3,88.10 <sup>10</sup>	-0,55	<sup>149</sup> La	3,88.10 <sup>10</sup>	-0,55
<sup>127m</sup> In	1,29.10 <sup>10</sup>	-0,63	<sup>132</sup> Xe	1,04.10 <sup>20</sup>	-0,51	<sup>140</sup> La	2,48.10 <sup>17</sup>	-1,39	<sup>149</sup> Ce	1,14.10 <sup>12</sup>	-0,65	<sup>149</sup> Ce	1,14.10 <sup>12</sup>	-0,65
<sup>127</sup> In	1,79.10 <sup>10</sup>	-0,63	<sup>133</sup> Sb	7,65.10 <sup>13</sup>	-0,64	<sup>140</sup> Ce	1,08.10 <sup>20</sup>	-0,99	<sup>149</sup> Pr	5,38.10 <sup>13</sup>	-0,74	<sup>149</sup> Pr	5,38.10 <sup>13</sup>	-0,74
<sup>127m</sup> Sn	1,05.10 <sup>13</sup>	-0,77	<sup>133m</sup> Te	3,45.10 <sup>15</sup>	-0,51	<sup>141</sup> Xe	3,36.10 <sup>11</sup>	-0,65	<sup>149</sup> Nd	2,74.10 <sup>15</sup>	-0,80	<sup>149</sup> Nd	2,74.10 <sup>15</sup>	-0,80
<sup>127</sup> Sn	6,50.10 <sup>14</sup>	-0,61	<sup>133</sup> Te	7,10.10 <sup>14</sup>	-0,56	<sup>141</sup> Cs	2,66.10 <sup>13</sup>	-0,56	<sup>149</sup> Pm	8,46.10 <sup>16</sup>	-0,89	<sup>149</sup> Pm	8,46.10 <sup>16</sup>	-0,89
<sup>127</sup> Sb	4,82.10 <sup>16</sup>	-0,61	<sup>133m</sup> I	1,41.10 <sup>12</sup>	-0,88	<sup>141</sup> Ba	1,72.10 <sup>15</sup>	-0,67	<sup>149</sup> Sm	2,12.10 <sup>19</sup>	-0,87	<sup>149</sup> Sm	2,12.10 <sup>19</sup>	-0,87
<sup>127m</sup> Te	2,24.10 <sup>17</sup>	-0,59	<sup>133</sup> I	1,63.10 <sup>17</sup>	-0,57	<sup>141</sup> La	2,26.10 <sup>16</sup>	-0,71	<sup>150</sup> Ce	3,93.10 <sup>11</sup>	-0,64	<sup>150</sup> Ce	3,93.10 <sup>11</sup>	-0,64
<sup>127</sup> Te	4,85.10 <sup>15</sup>	-0,74	<sup>133m</sup> Xe	1,35.10 <sup>16</sup>	-0,73	<sup>141</sup> Ce	4,52.10 <sup>18</sup>	-0,69	<sup>150</sup> Pr	1,66.10 <sup>12</sup>	-0,60	<sup>150</sup> Pr	1,66.10 <sup>12</sup>	-0,60
<sup>127</sup> I	8,49.10 <sup>18</sup>	-0,51	<sup>133</sup> Xe	1,01.10 <sup>18</sup>	-0,57	<sup>141</sup> Pr	9,72.10 <sup>19</sup>	-0,47	<sup>150</sup> Nd	2,08.10 <sup>19</sup>	-0,53	<sup>150</sup> Nd	2,08.10 <sup>19</sup>	-0,53
<sup>128n</sup> In	1,93.10 <sup>10</sup>	-0,26	<sup>133</sup> Cs	1,33.10 <sup>20</sup>	-0,55	<sup>142</sup> Cs	9,22.10 <sup>11</sup>	-0,51	<sup>150</sup> Pm	2,00.10 <sup>13</sup>	-1,78	<sup>150</sup> Pm	2,00.10 <sup>13</sup>	-1,78
<sup>128m</sup> In	7,74.10 <sup>07</sup>	-0,25	<sup>134m</sup> Sb	1,07.10 <sup>12</sup>	-0,72	<sup>142</sup> Ba	9,14.10 <sup>14</sup>	-1,01	<sup>150</sup> Sm	6,63.10 <sup>18</sup>	2,46	<sup>150</sup> Sm	6,63.10 <sup>18</sup>	2,46
<sup>128</sup> In	2,18.10 <sup>10</sup>	-0,26	<sup>134</sup> Sb	3,50.10 <sup>10</sup>	-0,67	<sup>142</sup> La	8,49.10 <sup>15</sup>	-1,02	<sup>151</sup> Ce	3,01.10 <sup>10</sup>	-0,72	<sup>151</sup> Ce	3,01.10 <sup>10</sup>	-0,72
<sup>128m</sup> Sn	1,01.10 <sup>12</sup>	-0,45	<sup>134</sup> Te	3,48.10 <sup>15</sup>	-1,10	<sup>142</sup> Ce	1,01.10 <sup>20</sup>	-0,72	<sup>151</sup> Pr	2,99.10 <sup>12</sup>	-0,51	<sup>151</sup> Pr	2,99.10 <sup>12</sup>	-0,51
<sup>128</sup> Sn	8,11.10 <sup>14</sup>	-0,43	<sup>134m</sup> I	8,43.10 <sup>13</sup>	-0,72	<sup>142m</sup> Pr	1,63.10 <sup>13</sup>	-0,52	<sup>151</sup> Nd	1,94.10 <sup>14</sup>	-0,63	<sup>151</sup> Nd	1,94.10 <sup>14</sup>	-0,63
<sup>128m</sup> Sb	1,64.10 <sup>13</sup>	-0,85	<sup>134</sup> I	6,99.10 <sup>15</sup>	-0,96	<sup>142</sup> Pr	3,67.10 <sup>15</sup>	-0,59	<sup>151</sup> Pm	2,72.10 <sup>16</sup>	-0,63	<sup>151</sup> Pm	2,72.10 <sup>16</sup>	-0,63
<sup>128</sup> Sb	8,05.10 <sup>15</sup>	-0,48	<sup>134m</sup> Xe	2,67.10 <sup>10</sup>	-1,14	<sup>142</sup> Nd	1,57.10 <sup>18</sup>	-0,38	<sup>151</sup> Sm	1,15.10 <sup>19</sup>	-2,27	<sup>151</sup> Sm	1,15.10 <sup>19</sup>	-2,27
<sup>128</sup> Te	1,79.10 <sup>19</sup>	0,03	<sup>134</sup> Xe	1,49.10 <sup>20</sup>	-0,78	<sup>143</sup> Cs	4,58.10 <sup>11</sup>	-0,63	<sup>151</sup> Eu	9,98.10 <sup>16</sup>	-1,59	<sup>151</sup> Eu	9,98.10 <sup>16</sup>	-1,59
<sup>128</sup> I	2,96.10 <sup>13</sup>	-0,60	<sup>134m</sup> Cs	2,63.10 <sup>14</sup>	-0,71	<sup>143</sup> Ba	1,55.10 <sup>13</sup>	-0,71	<sup>152</sup> Pr	2,21.10 <sup>11</sup>	-0,64	<sup>152</sup> Pr	2,21.10 <sup>11</sup>	-0,64
<sup>128</sup> Xe	5,54.10 <sup>17</sup>	-0,53	<sup>134</sup> Cs	5,70.10 <sup>18</sup>	-0,66	<sup>143</sup> La	1,16.10 <sup>15</sup>	-0,78	<sup>152</sup> Nd	1,20.10 <sup>14</sup>	-0,63	<sup>152</sup> Nd	1,20.10 <sup>14</sup>	-0,63
<sup>129m</sup> In	6,34.10 <sup>09</sup>	-0,25	<sup>134</sup> Ba	1,89.10 <sup>18</sup>	-0,78	<sup>143</sup> Ce	1,64.10 <sup>17</sup>	-1,49	<sup>152n</sup> Pm	6,34.10 <sup>12</sup>	-1,36	<sup>152n</sup> Pm	6,34.10 <sup>12</sup>	-1,36
<sup>129</sup> In	1,52.10 <sup>10</sup>	-0,26	<sup>135</sup> Te	1,19.10 <sup>13</sup>	-0,59	<sup>143</sup> Pr	1,62.10 <sup>18</sup>	-1,47	<sup>152m</sup> Pm	2,57.10 <sup>12</sup>	-1,37	<sup>152m</sup> Pm	2,57.10 <sup>12</sup>	-1,37
<sup>129m</sup> Sn	7,67.10 <sup>13</sup>	-0,50	<sup>135</sup> I	4,72.10 <sup>16</sup>	-0,57	<sup>143</sup> Nd	8,40.10 <sup>19</sup>	-1,14	<sup>152</sup> Pm	4,42.10 <sup>13</sup>	-0,64	<sup>152</sup> Pm	4,42.10 <sup>13</sup>	-0,64
<sup>129</sup> Sn	1,22.10 <sup>13</sup>	-0,41	<sup>135m</sup> Xe	5,15.10 <sup>14</sup>	-0,81	<sup>144</sup> Ba	7,86.10 <sup>12</sup>	-0,51	<sup>152</sup> Sm	1,64.10 <sup>19</sup>	-0,82	<sup>152</sup> Sm	1,64.10 <sup>19</sup>	-0,82
<sup>129m</sup> Sb	1,16.10 <sup>14</sup>	-0,68	<sup>135</sup> Xe	7,67.10 <sup>16</sup>	-0,64	<sup>144</sup> La	4,57.10 <sup>13</sup>	-0,64	<sup>152n</sup> Eu	1,77.10 <sup>10</sup>	-1,48	<sup>152n</sup> Eu	1,77.10 <sup>10</sup>	-1,48
<sup>129</sup> Sb	4,79.10 <sup>15</sup>	-0,56	<sup>135m</sup> Cs	1,64.10 <sup>13</sup>	-1,21	<sup>144</sup> Ce	2,77.10 <sup>19</sup>	-0,20	<sup>152m</sup> Eu	1,98.10 <sup>13</sup>	-1,59	<sup>152m</sup> Eu	1,98.10 <sup>13</sup>	-1,59
<sup>129m</sup> Te	4,30.10 <sup>17</sup>	-0,60	<sup>135</sup> Cs	1,47.10 <sup>20</sup>	-0,55	<sup>144m</sup> Pr	7,25.10 <sup>12</sup>	-0,38	<sup>152</sup> Eu	1,89.10 <sup>16</sup>	-1,37	<sup>152</sup> Eu	1,89.10 <sup>16</sup>	-1,37
<sup>129</sup> Te	1,47.10 <sup>15</sup>	-1,28	<sup>135m</sup> Ba	1,21.10 <sup>13</sup>	-1,32	<sup>144</sup> Pr	1,17.10 <sup>15</sup>	-0,20	<sup>152</sup> Dg	1,01.10 <sup>16</sup>	5,56	<sup>152</sup> Dg	1,01.10 <sup>16</sup>	5,56
<sup>129</sup> I	2,46.10 <sup>19</sup>	-0,72	<sup>135</sup> Ba	2,20.10 <sup>16</sup>	-1,00	<sup>144</sup> Nd	5,15.10 <sup>19</sup>	0,44	<sup>153</sup> Pr	8,90.10 <sup>10</sup>	-0,84	<sup>153</sup> Pr	8,90.10 <sup>10</sup>	-0,84
<sup>129m</sup> Xe	3,32.10 <sup>13</sup>	-0,92	<sup>136</sup> Te	4,81.10 <sup>12</sup>	-0,67	<sup>145</sup> Ba	1,20.10 <sup>12</sup>	-0,58	<sup>153</sup> Nd	3,08.10 <sup>12</sup>	-0,53	<sup>153</sup> Nd	3,08.10 <sup>12</sup>	-0,53
<sup>129</sup> Xe	7,64.10 <sup>15</sup>	-0,64	<sup>136m</sup> I	3,67.10 <sup>13</sup>	-0,69	<sup>145</sup> La	2,10.10 <sup>13</sup>	-0,63	<sup>153</sup> Pm	3,89.10 <sup>13</sup>	-0,68	<sup>153</sup> Pm	3,89.10 <sup>13</sup>	-0,68
<sup>130m</sup> Sn	2,60.10 <sup>13</sup>	-0,36	<sup>136</sup> I	4,73.10 <sup>13</sup>	-0,80	<sup>145</sup> Ce	1,75.10 <sup>14</sup>	-1,23	<sup>153m</sup> Sm	1,01.10 <sup>07</sup>	-2,08	<sup>153m</sup> Sm	1,01.10 <sup>07</sup>	-2,08
<sup>130</sup> Sn	2,33.10 <sup>13</sup>	-0,41	<sup>136</sup> Xe	1,44.10 <sup>20</sup>	-0,55	<sup>145</sup> Pr	2,13.10 <sup>16</sup>	-1,23	<sup>153</sup> Sm	2,60.10 <sup>16</sup>	-0,66	<sup>153</sup> Sm	2,60.10 <sup>16</sup>	-0,66
<sup>130m</sup> Sb	1,30.10 <sup>14</sup>	-0,47	<sup>136m</sup> Cs	3,33.10 <sup>11</sup>	-2,41	<sup>145</sup> Nd	6,01.10 <sup>19</sup>	-1,48	<sup>153</sup> Eu	6,67.10 <sup>18</sup>	-0,68	<sup>153</sup> Eu	6,67.10 <sup>18</sup>	-0,68
<sup>130</sup> Sb	9,82.10 <sup>14</sup>	-0,44	<sup>136</sup> Cs	1,78.10 <sup>17</sup>	-0,64	<sup>146</sup> Ba	2,78.10 <sup>11</sup>	-0,60	<sup>154</sup> Pr	1,28.10 <sup>10</sup>	-0,91	<sup>154</sup> Pr	1,28.10 <sup>10</sup>	-0,91
			<sup>136m</sup> Ba	5,38.10 <sup>07</sup>	-2,72	<sup>146m</sup> La	2,67.10 <sup>12</sup>	-0,54	<sup>154</sup> Nd	1,20.10 <sup>12</sup>	-0,65	<sup>154</sup> Nd	1,20.10 <sup>12</sup>	-0,65

# ANNEXES

<sup>154m</sup> Pm	2,74.10 <sup>12</sup>	-0,93	<sup>154</sup> Gd	1,28.10 <sup>17</sup>	-1,17	<sup>155m</sup> Gd	4,78.10 <sup>03</sup>	-7,42	<sup>156</sup> Eu	6,97.10 <sup>16</sup>	-0,74
<sup>154</sup> Pm	6,56.10 <sup>12</sup>	-0,72	<sup>155</sup> Nd	1,18.10 <sup>11</sup>	-0,91	<sup>155</sup> Gd	5,14.10 <sup>17</sup>	-0,73	<sup>156</sup> Gd	2,80.10 <sup>18</sup>	-0,65
<sup>154</sup> Sm	5,34.10 <sup>18</sup>	-0,81	<sup>155</sup> Pm	1,84.10 <sup>12</sup>	-0,80	<sup>156</sup> Nd	2,14.10 <sup>10</sup>	-1,27			
<sup>154m</sup> Eu	3,65.10 <sup>12</sup>	-0,87	<sup>155</sup> Sm	7,89.10 <sup>13</sup>	-0,89	<sup>156</sup> Pm	5,55.10 <sup>11</sup>	-0,75			
<sup>154</sup> Eu	1,67.10 <sup>18</sup>	-0,84	<sup>155</sup> Eu	2,98.10 <sup>18</sup>	-0,77	<sup>156</sup> Sm	1,27.10 <sup>15</sup>	-0,76			

Tableau : Ecart de concentration entre DARWIN et CYRUS à la fin de l'irradiation pour un assemblage de cœur interne PHENIX irradié 993 jours (gris : noyaux lourds et noyaux stables, or : écart supérieur à 1 %).

## ANNEXE 4 :

### Liste des courbes de fission élémentaire

La présente annexe contient les figures des courbes de fission élémentaire pour les noyaux suivants associés aux spectres neutroniques :

- $^{235}\text{U}$  (th)
- $^{238}\text{U}$  (R)
- $^{239}\text{Pu}$  (th)
- $^{239}\text{Pu}$  (R)

Pour chacun des noyaux lourds, les CFE de composante :  $\beta$ ,  $\gamma$  et  $\beta+\gamma$  sont tracées.

Les CFE qui sont tracées proviennent de données expérimentales obtenues par calorimétrie ou par spectrométrie et de calculs réalisés par DARWIN en utilisant l'option « fission élémentaire » et avec les données nucléaires de la bibliothèque JEFF3.1.1. Seules les expériences qui semblent les plus précises sont présentées.

[1] **M. LOTT & al. (1973)** Puissance résiduelle totale émise par les produits de fission thermiques de l' $^{235}\text{U}$ , Journal of Nuclear Energy, Vol. 27, N.9, pp. 597-605, September 1973

[2] **J.K. DICKENS & al. (1980)** Fission-product energy release for times following thermal neutron fission of  $^{235}\text{U}$  between 2 and 14 000 s, Nuclear Science and Engineering, Vol. 74, pp 106-129, 1980

[3] **P.I. JOHANSSON (1988)** Integral determination of the beta and gamma heat in thermal-neutron-induced fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  and of the gamma heat in fast fission of  $^{238}\text{U}$ , Mito, Japan, May 30 – June 3, 1988, pp. 857-860

[4] **H.V. NGUYEN & al. (1997)** Decay heat measurements following neutron fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ , Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, Italy, May 19-24, 1997, pp. 835-838

[5] **M. AKIYAMA & S. AN (1982)** Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Antwerp, Belgium, September 6-10, 1982, pp. 237

- [6] **E.H. SEABURY (1997)** Decay heat measurements following neutron fission of  $^{238}\text{U}$ , Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Bologna, Italy, May 19-24, 1997, pp. 753-755
- [7] **J.K. DICKENS & al. (1981)** Fission-product energy release for times following thermal neutron fission of Plutonium-239 and Plutonium-241 between 2 and 14 000 s, Nuclear Science and Engineering, Vol. 78, pp. 126-146, 1981
- [8] **C. FICHE (1978)** Mesure de la puissance résiduelle totale émise par les produits de fission thermique de  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{233}\text{U}$ , NEACRP/L(1978)212
- [9] **K. JOHNSTON (1965)** A calorimetric determination of fission product heating in fast reactor plutonium fuel, Journal of Nuclear Energy, Vol. 19, Parts A/B, pp. 527-539, 1965

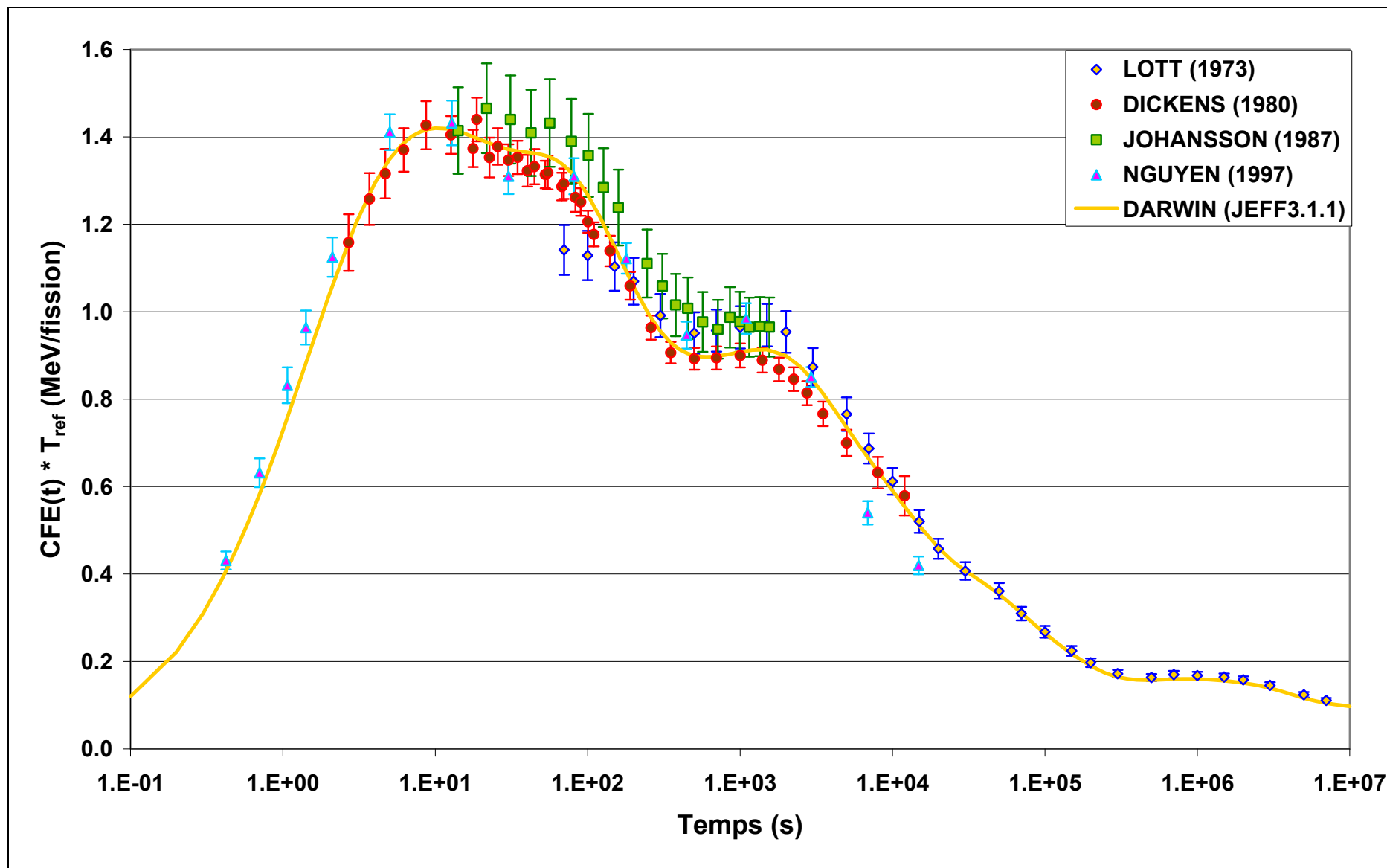


Fig. : Composante  $\beta+\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de  $^{235}\text{U}$  (th).

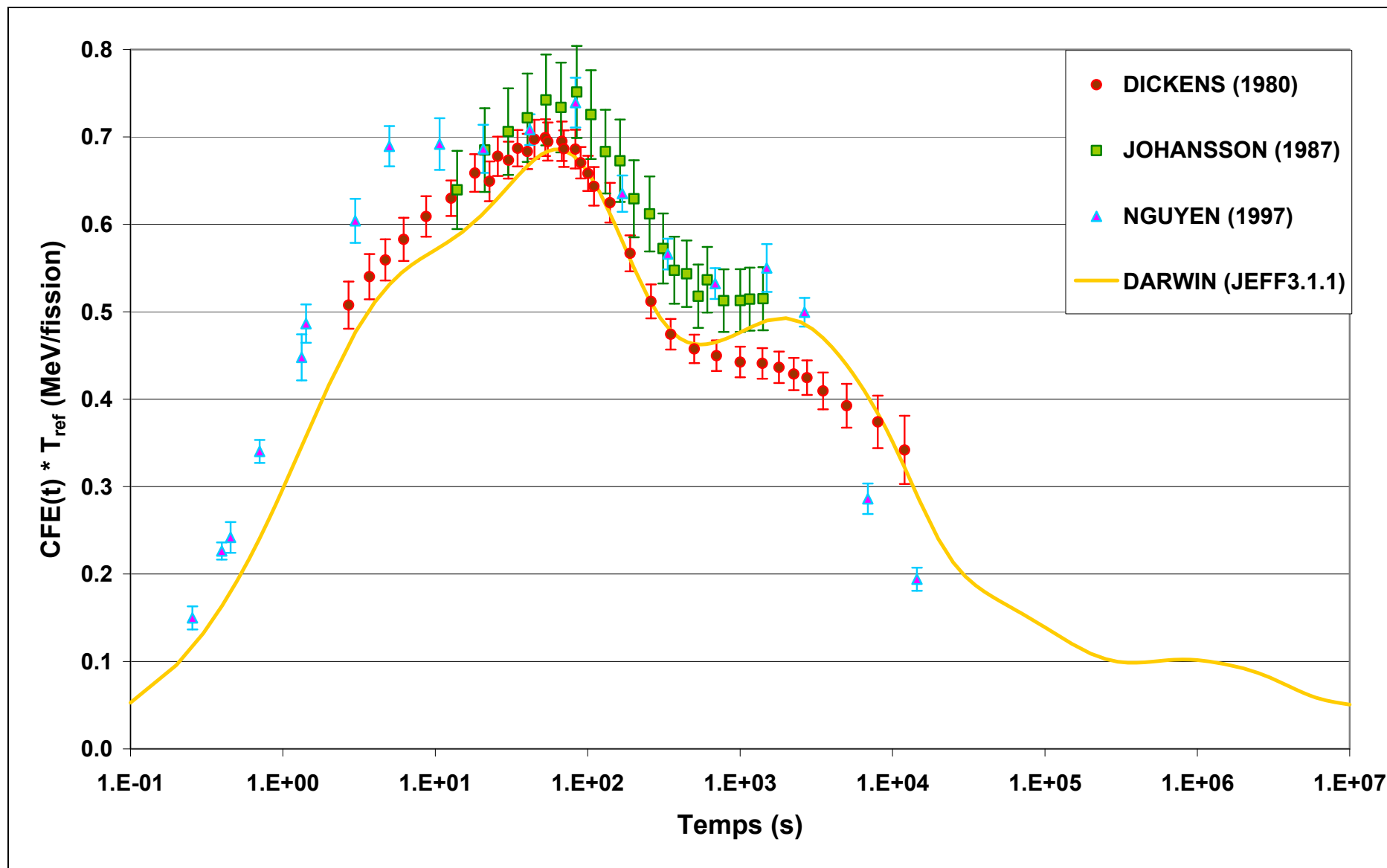


Fig. : Composante  $\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$  (th).

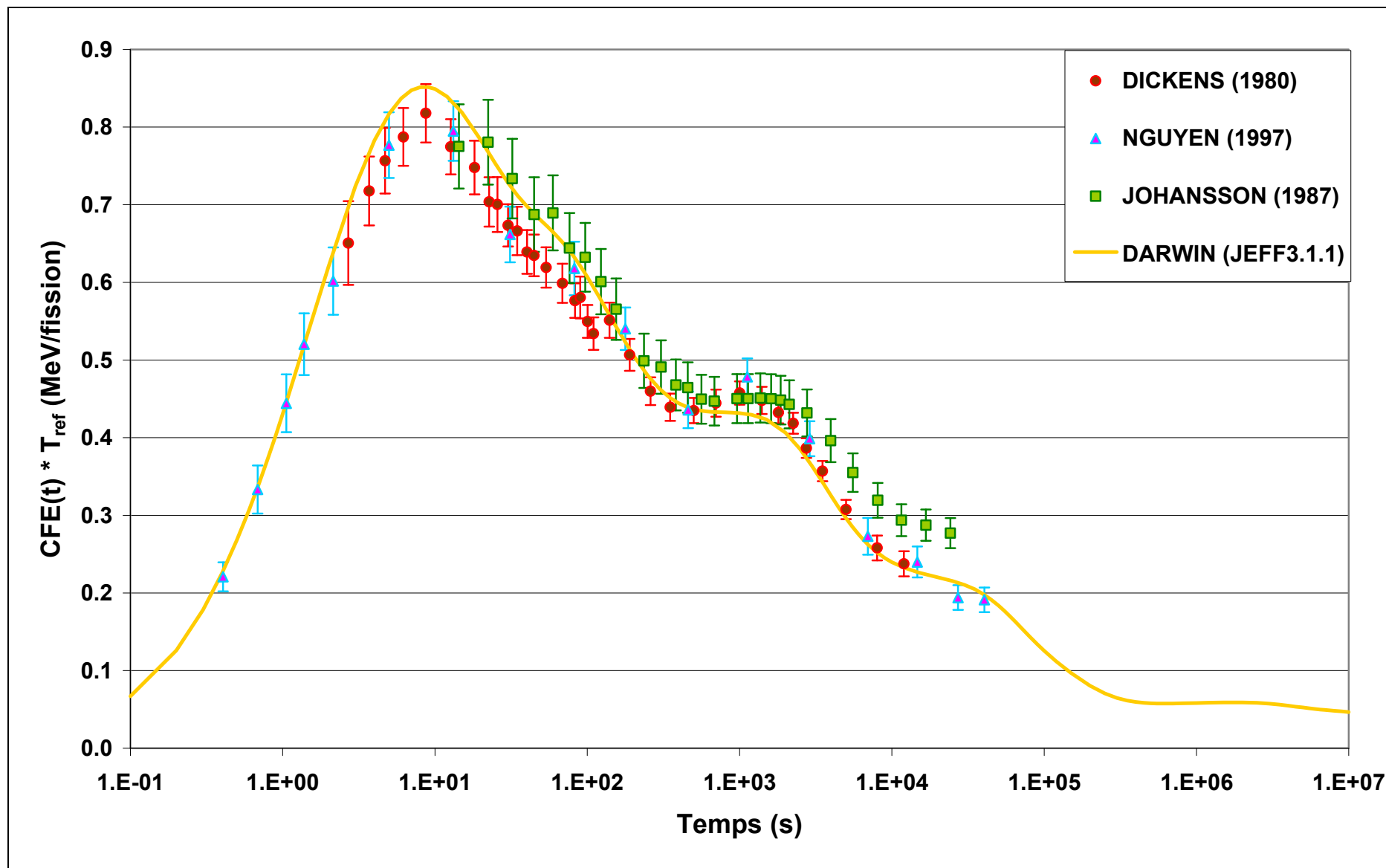


Fig. : Composante  $\beta$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{235}\text{U}$  (th).



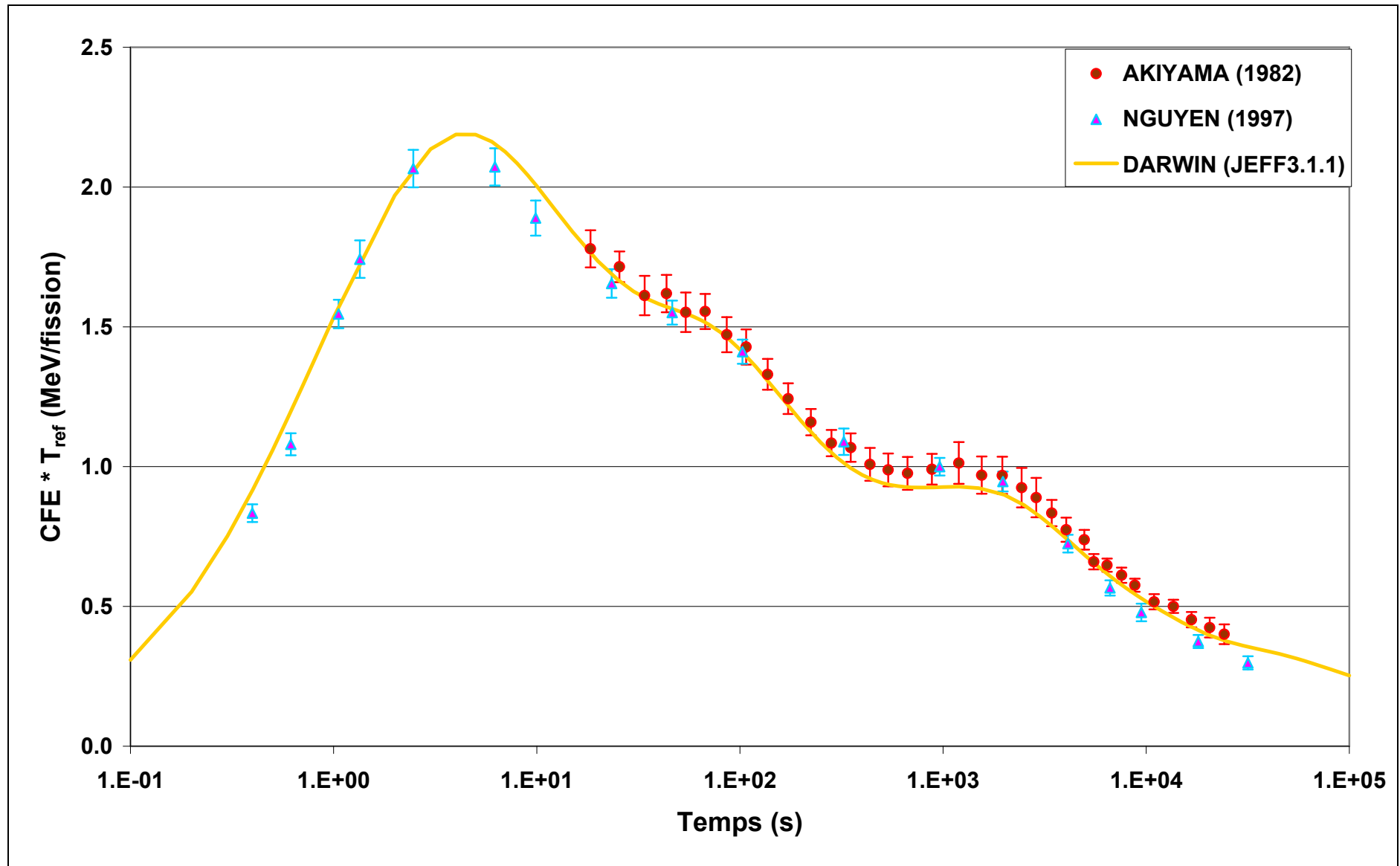


Fig. : Composante  $\beta+\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de  $^{238}\text{U}$  (R).

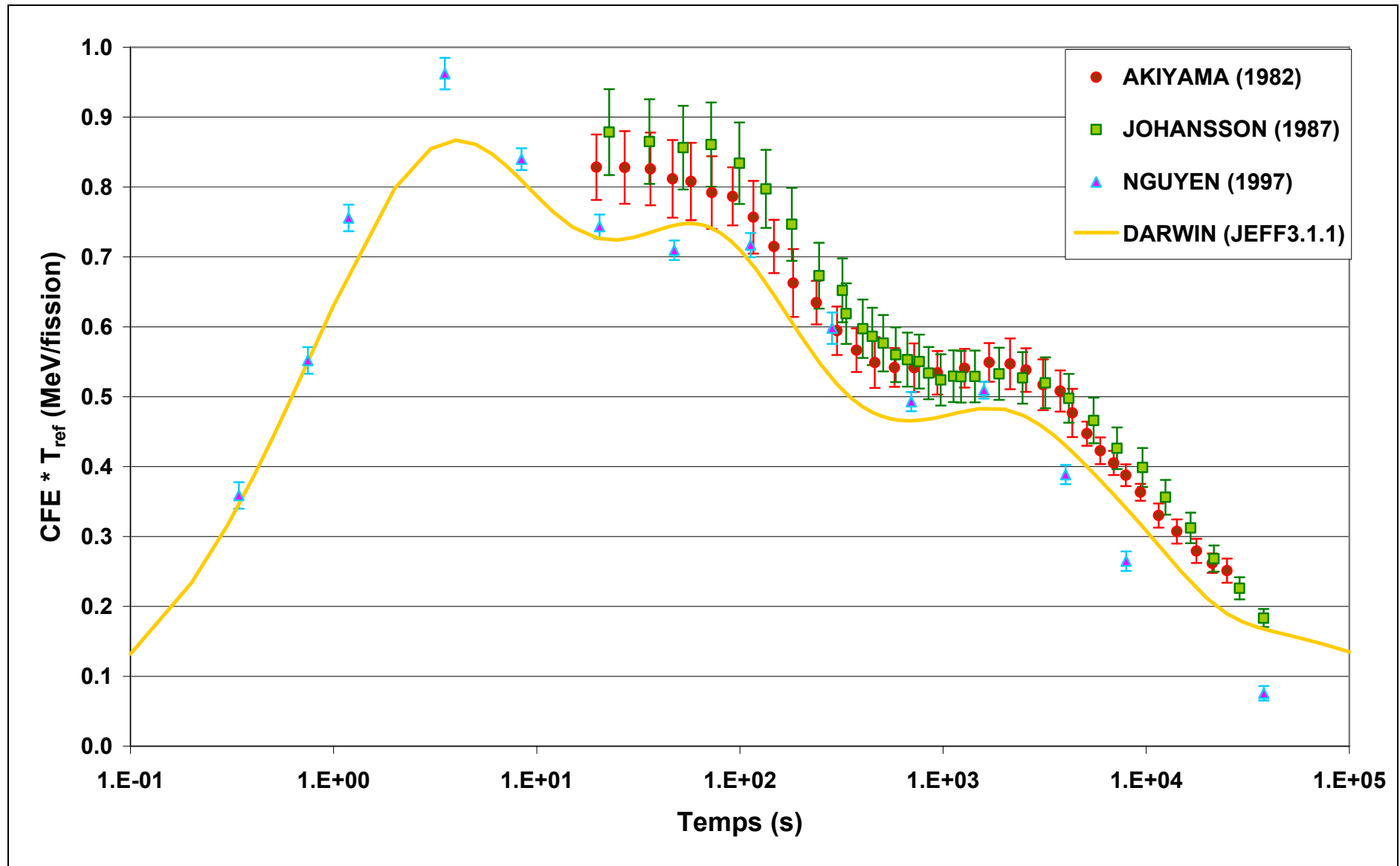


Fig. : Composante  $\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{238}\text{U}$  (R).

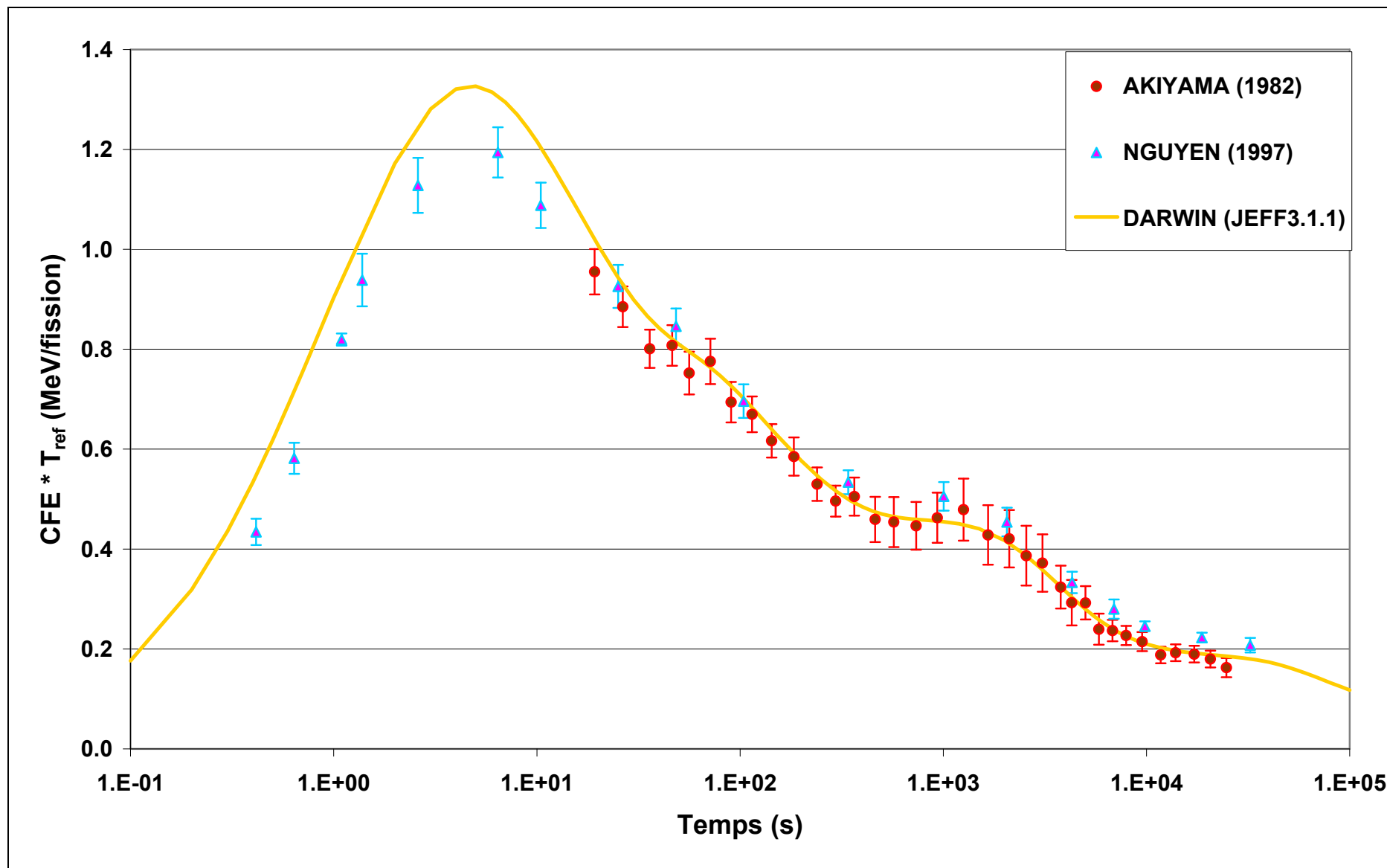


Fig. : Composante  $\beta$  de la courbe de fission élémentaire de  $^{238}\text{U}$  (R).

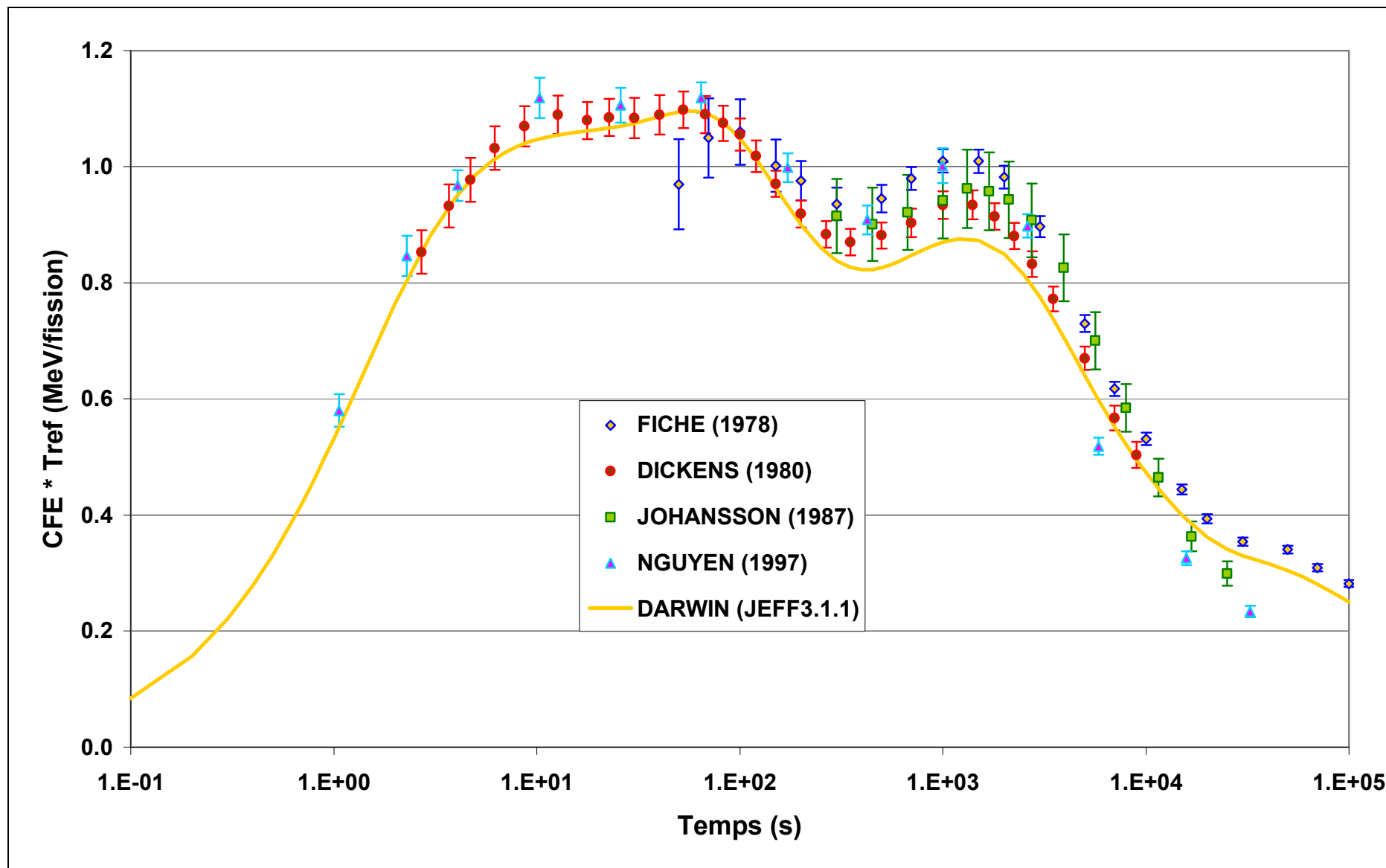


Fig. : Composante  $\beta+\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{239}\text{Pu}$  (th).

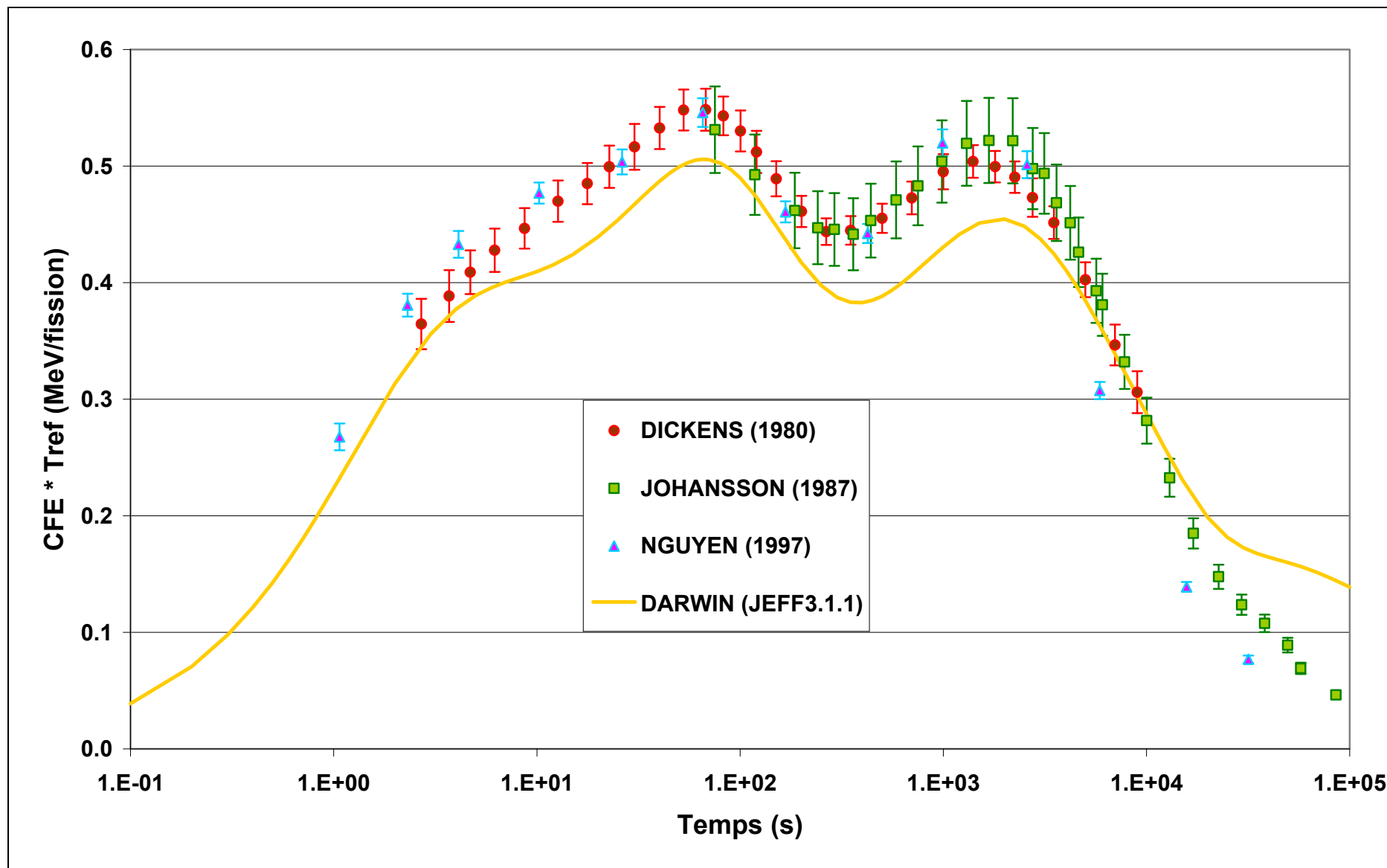


Fig. : Composante  $\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{239}\text{Pu}$  (th).

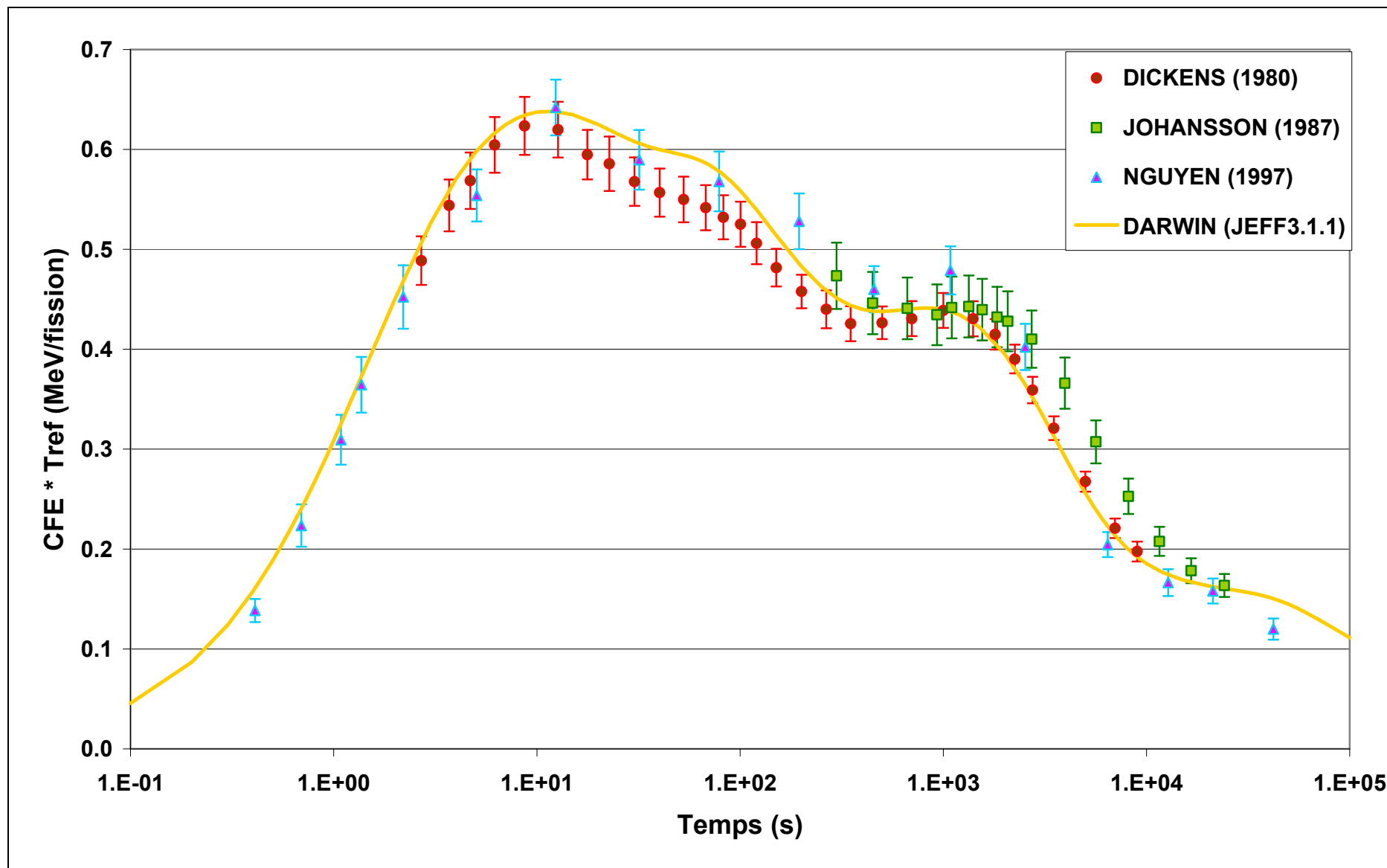


Fig. : Composante  $\beta$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{239}\text{Pu}$  (th).

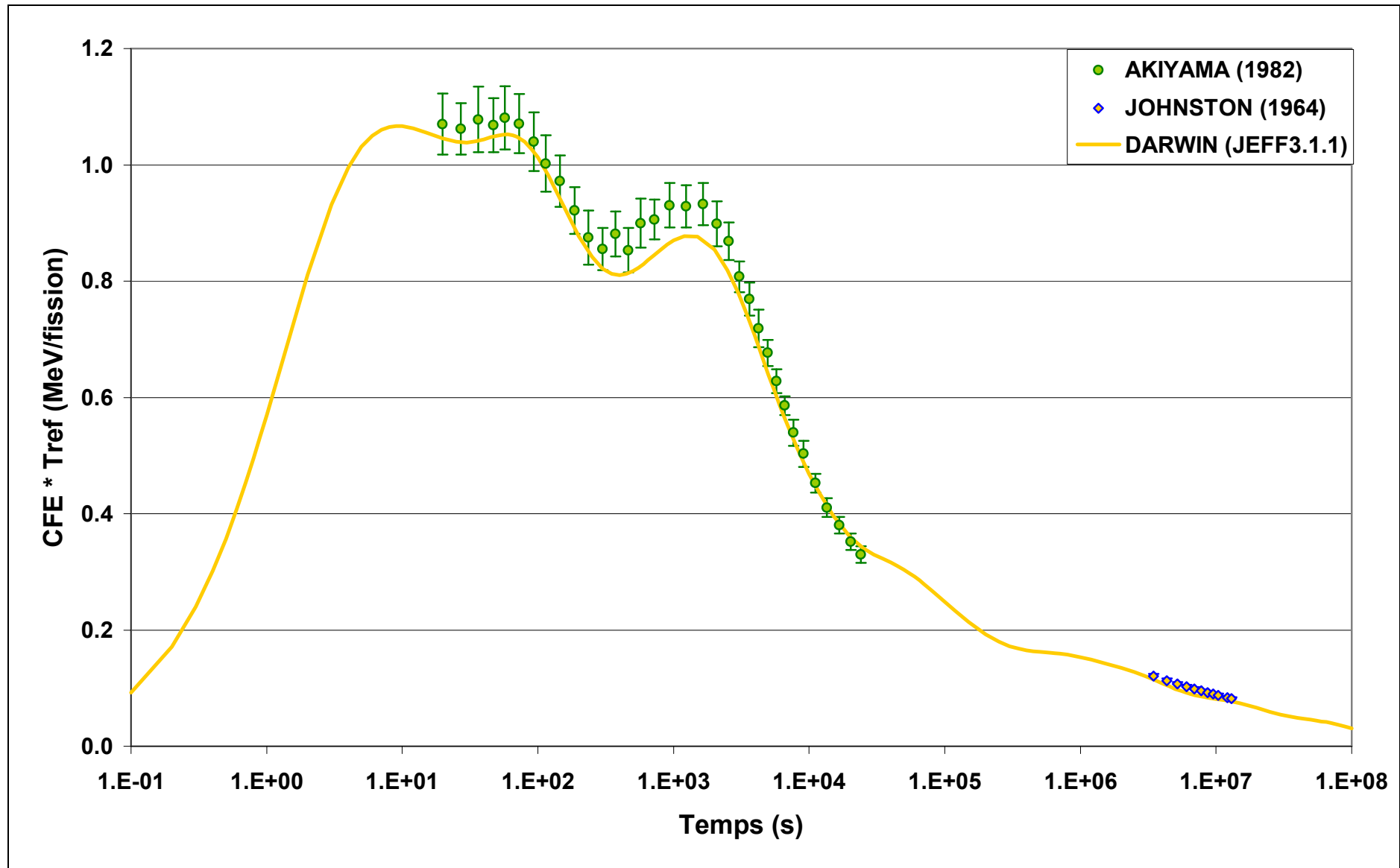


Fig. : Composante  $\beta+\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{239}\text{Pu}$  (R).

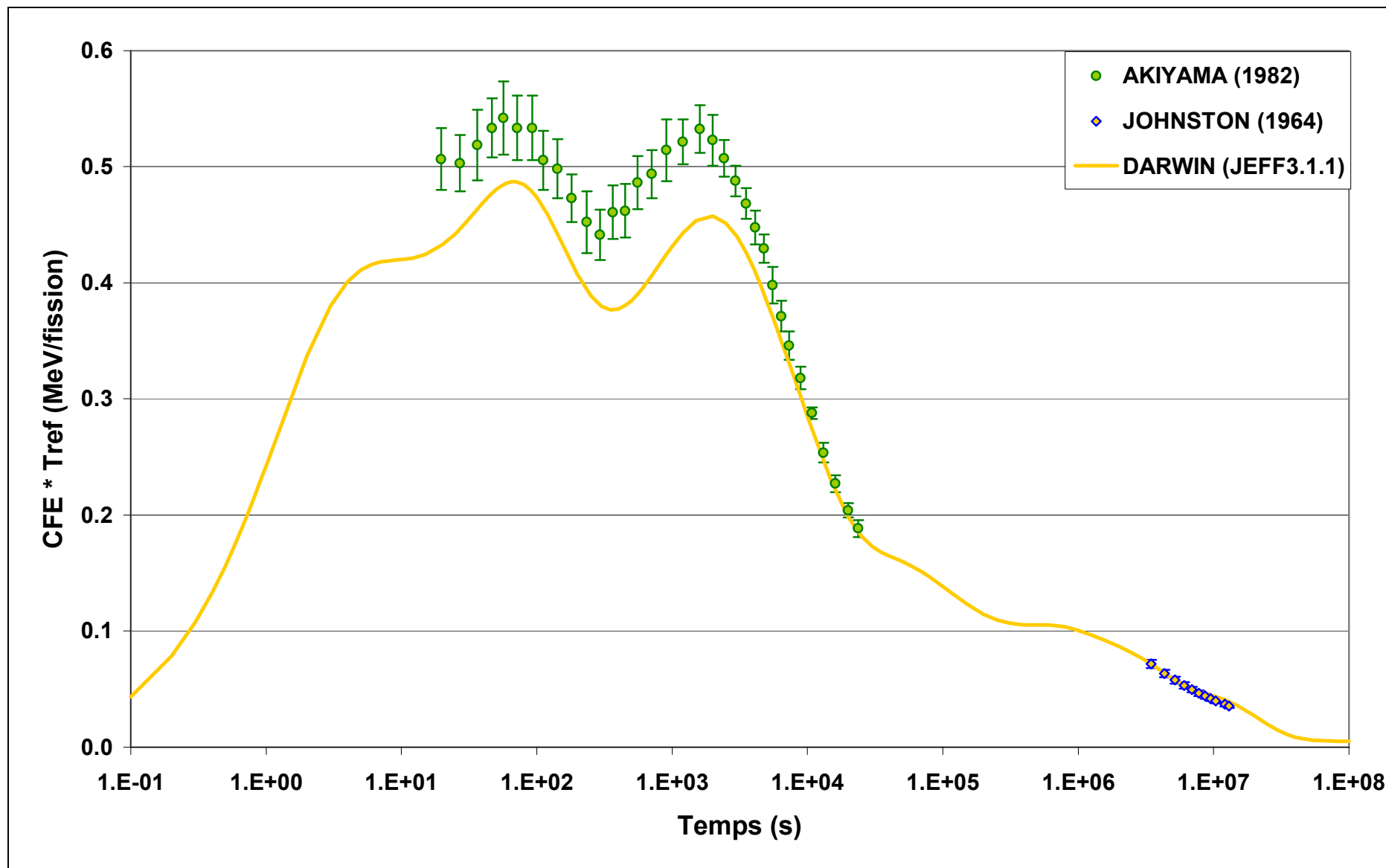


Fig. : Composante  $\gamma$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{239}\text{Pu}$  (R).



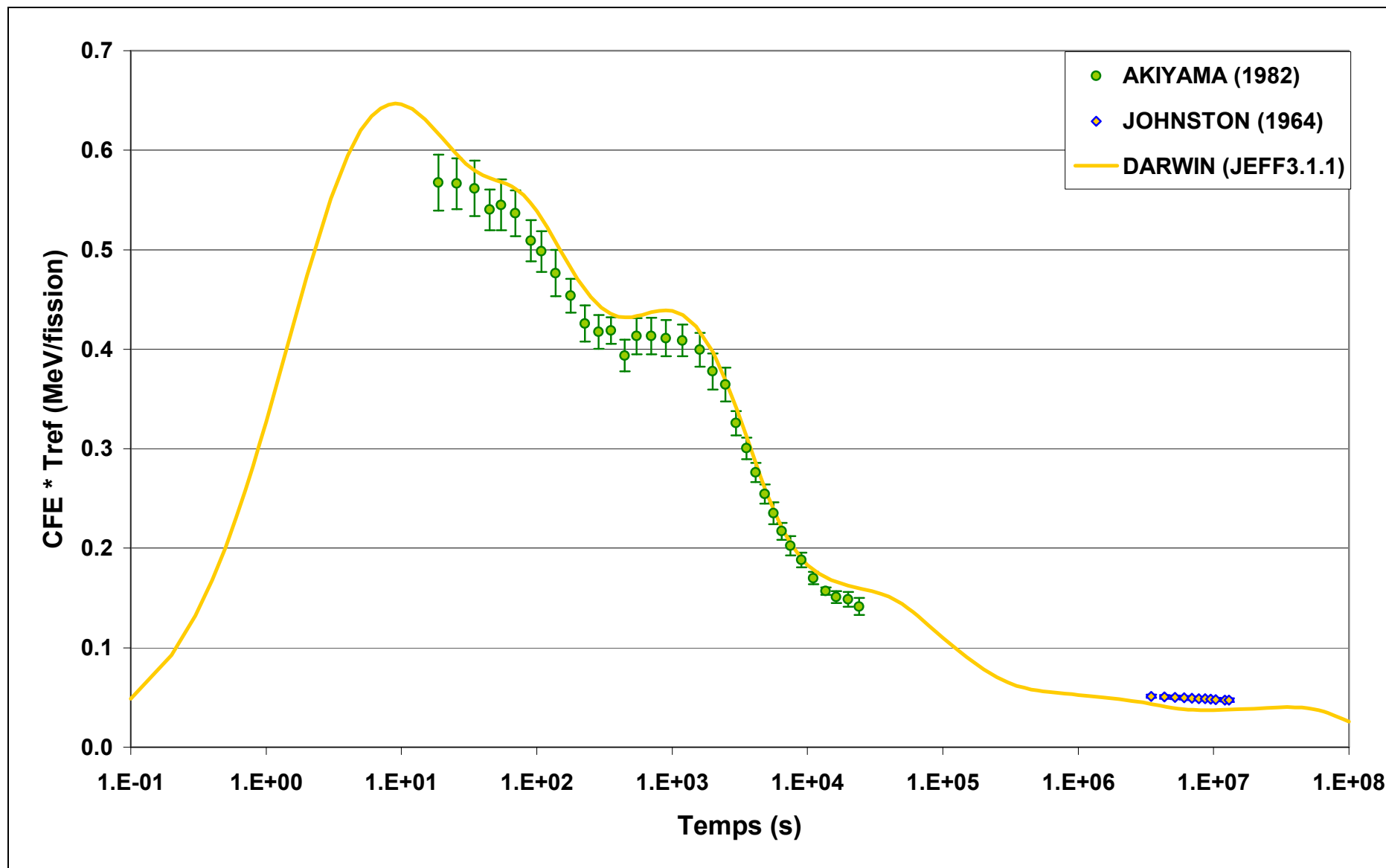


Fig. : Composante  $\beta$  de la courbe de fission élémentaire de l' $^{239}\text{Pu}$  (R).



# RESUME

Ce travail de thèse s'inscrit dans le domaine de l'énergie nucléaire, de l'aval du cycle du combustible et du calcul des incertitudes. Le CEA doit concevoir le prototype ASTRID, réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR), qui est l'un des concepts retenus au sein du forum Génération IV et dont la puissance résiduelle et l'estimation de son incertitude ont un impact important. Ce travail consiste à développer un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les RNR.

La démarche s'est déroulée en trois temps.

La première étape a permis de limiter le nombre de paramètres intervenant dans le calcul de la puissance résiduelle. Pour cela, un essai de puissance résiduelle sur le réacteur PHENIX (PUIREX 2008) a été interprété de façon à valider expérimentalement le formulaire d'évolution DARWIN pour les RNR et à quantifier les termes sources de la puissance résiduelle.

La deuxième étape a eu pour but de développer un code de propagation des incertitudes : CyRUS (**C**ycle **R**eactor **U**ncertainty and **S**ensitivity). Une méthode de propagation déterministe a été retenue car elle permet des calculs rapides et fiables. Les hypothèses de linéarité et de normalité qu'elle entraîne ont été validées théoriquement. Le code a également été comparé avec succès à un code stochastique sur l'exemple de la fission élémentaire thermique de  $^{235}\text{U}$ .

La dernière partie a été une application du code sur des expériences de puissance résiduelle d'un réacteur, de bilan matière d'une aiguille combustible et d'une fission élémentaire de  $^{235}\text{U}$ . Le code a démontré des possibilités de retour d'expériences sur les données nucléaires impactant l'incertitude de cette problématique.

Deux résultats principaux ont été mis en évidence. Tout d'abord, les hypothèses simplificatrices des codes déterministes sont compatibles avec un calcul précis de l'incertitude de la puissance résiduelle. Ensuite, la méthode développée est intrusive et permet un retour d'expérience sur les données nucléaires des expériences du cycle. En particulier, ce travail a montré qu'il est déterminant de mesurer précisément les rendements de fission indépendants et de déterminer leurs matrices de covariances afin d'améliorer la précision du calcul de la puissance résiduelle.

---

# SUMMARY

This PhD study is in the field of nuclear energy, the back end of nuclear fuel cycle and uncertainty calculations. The CEA must design the prototype ASTRID, a sodium cooled fast reactor (SFR) and one of the selected concepts of the Generation IV forum, for which the calculation of the value and the uncertainty of the decay heat have a significant impact. In this study is developed a code of propagation of uncertainties of nuclear data on the decay heat in SFR.

The process took place in three stages.

The first step has limited the number of parameters involved in the calculation of the decay heat. For this, an experiment on decay heat on the reactor PHENIX (PUIREX 2008) was studied to validate experimentally the DARWIN package for SFR and quantify the source terms of the decay heat.

The second step was aimed to develop a code of propagation of uncertainties : CyRUS (**C**ycle **R**eactor **U**ncertainty and **S**ensitivity). A deterministic propagation method was chosen because calculations are fast and reliable. Assumptions of linearity and normality have been validated theoretically. The code has also been successfully compared with a stochastic code on the example of the thermal burst fission curve of  $^{235}\text{U}$ .

The last part was an application of the code on several experiments : decay heat of a reactor, isotopic composition of a fuel pin and the burst fission curve of  $^{235}\text{U}$ . The code has demonstrated the possibility of feedback on nuclear data impacting the uncertainty of this problem.

Two main results were highlighted. Firstly, the simplifying assumptions of deterministic codes are compatible with a precise calculation of the uncertainty of the decay heat. Secondly, the developed method is intrusive and allows feedback on nuclear data from experiments on the back end of nuclear fuel cycle. In particular, this study showed how important it is to measure precisely independent fission yields along with their covariance matrices in order to improve the accuracy of the calculation of the decay heat.